

日本国特許庁  
JAPAN PATENT OFFICE

22.12.2004

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日      2004年 9月29日  
Date of Application:

出願番号      特願2004-283540  
Application Number:

[ST. 10/C] : [JP2004-283540]

出願人      住友化学株式会社  
Applicant(s):

REC'D 20 JAN 2005
WIPO PCT

PRIORITY DOCUMENT  
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH  
RULE 17.1(a) OR (b)

2004年11月10日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

小川

洋

**【書類名】** 特許願  
**【整理番号】** S11112JP01  
**【提出日】** 平成16年 9月29日  
**【あて先】** 特許庁長官殿  
**【国際特許分類】**  
 A01N 29/02  
 A01N 37/34 101  
 C07C 19/10  
 C07C255/04

**【発明者】**  
**【住所又は居所】** 兵庫県宝塚市高司四丁目 2 番 1 号 住友化学工業株式会社内  
**【氏名】** 大平 大輔

**【発明者】**  
**【住所又は居所】** 兵庫県宝塚市高司四丁目 2 番 1 号 住友化学工業株式会社内  
**【氏名】** 大高 健

**【特許出願人】**  
**【識別番号】** 000002093  
**【氏名又は名称】** 住友化学工業株式会社

**【代理人】**  
**【識別番号】** 100093285  
**【弁理士】**  
**【氏名又は名称】** 久保山 隆  
**【電話番号】** 06-6220-3405

**【選任した代理人】**  
**【識別番号】** 100113000  
**【弁理士】**  
**【氏名又は名称】** 中山 亨  
**【電話番号】** 06-6220-3405

**【選任した代理人】**  
**【識別番号】** 100119471  
**【弁理士】**  
**【氏名又は名称】** 榎本 雅之  
**【電話番号】** 06-6220-3405

**【先の出願に基づく優先権主張】**  
**【出願番号】** 特願2003-431908  
**【出願日】** 平成15年12月26日

**【先の出願に基づく優先権主張】**  
**【出願番号】** 特願2004- 36230  
**【出願日】** 平成16年 2月13日

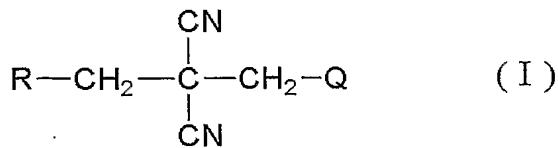
**【手数料の表示】**  
**【予納台帳番号】** 010238  
**【納付金額】** 16,000円

**【提出物件の目録】**  
**【物件名】** 特許請求の範囲 1  
**【物件名】** 明細書 1  
**【物件名】** 図面 1  
**【物件名】** 要約書 1  
**【包括委任状番号】** 0212949

**【書類名】**特許請求の範囲

**【請求項1】**

式(I)



[式中、RはC1-C4フルオロアルキル基を表し、Qはハロゲン原子、ハロゲン原子で置換されていてもよいC1-C6アルキル基、ハロゲン原子で置換されていてもよいC2-C6アルケニル基、ハロゲン原子で置換されていてもよいC2-C6アルキニル基、ハロゲン原子で置換されていてもよい(C3-C7シクロアルキル基又はハロゲン原子で置換されていてもよい(C3-C7シクロアルキル)C1-C4アルキル基を表す。]

で示されるニトリル化合物。

**【請求項2】**

RがC2フルオロアルキル基である請求項1記載のニトリル化合物。

**【請求項3】**

Qがハロゲン原子で置換されていてもよいC4アルキル基である請求項1または2に記載のニトリル化合物。

**【請求項4】**

請求項1～3いずれか一項記載のニトリル化合物を有効成分として含有することを特徴とする有害生物防除剤。

**【請求項5】**

請求項1～3いずれか一項記載のニトリル化合物の有効量を有害生物又は有害生物の生育場所に施用することを特徴とする有害生物の防除方法。

**【書類名】**明細書

**【発明の名称】**ニトリル化合物ならびにその有害生物防除用途

**【技術分野】**

**【0001】**

本発明は、フルオロアルキル基を含有するニトリル化合物ならびにその有害生物防除用途に関する。

**【背景技術】**

**【0002】**

従来から、昆虫、ダニ及び線虫等の有害生物の防除を目的とする化合物ならびにそれらの化合物による防除方法が提供されている。しかしながら、場合によりこれらの化合物が充分な効力を示さないことがある。

また、ある種のフルオロアルキル基を含有するニトリル化合物が、抗てんかん剤の成分化合物の製造中間体として知られている。

**【0003】**

【特許文献1】特開平4-21652号公報。

**【0004】**

【特許文献2】特開平6-116200号公報。

**【発明の開示】**

**【発明が解決しようとする課題】**

**【0005】**

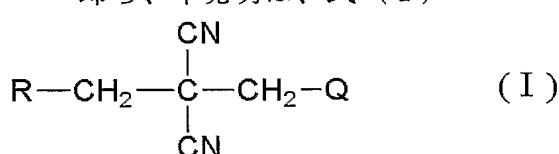
本発明は、有害生物に対して優れた防除効力を有する化合物ならびにその化合物の有害生物防除用途を提供することを課題とする。

**【課題を解決するための手段】**

**【0006】**

本発明者等は、優れた有害生物防除効力を有する化合物を見出すべく鋭意検討を重ねた結果、下記式(I)で示されるニトリル化合物が昆虫及びダニ等の節足動物、並びに線虫等の有害生物に対して優れた防除活性を有することを見出し本発明に至った。

即ち、本発明は、式(I)



[式中、RはC1-C4フルオロアルキル基を表し、Qはハロゲン原子、ハロゲン原子で置換されていてもよいC1-C6アルキル基、ハロゲン原子で置換されていてもよいC2-C6アルケニル基、ハロゲン原子で置換されていてもよいC2-C6アルキニル基、ハロゲン原子で置換されていてもよいC3-C7シクロアルキル基又はハロゲン原子で置換されていてもよい(C3-C7シクロアルキル)C1-C4アルキル基を表す。]で示されるニトリル化合物(以下、本発明化合物と記す)、本発明化合物を有効成分として含有することを特徴とする有害生物防除剤及び本発明化合物の有効量を有害生物若しくは有害生物の生息場所に施用することを特徴とする有害生物の防除方法を提供する。

**【発明の効果】**

**【0007】**

本発明により、昆虫、ダニ及び線虫等の有害生物を効果的に防除することができる。

**【発明を実施するための最良の形態】**

**【0008】**

本発明において、

ハロゲン原子とは、フッ素原子、塩素原子、臭素原子を表し、

“C1-C6アルキル基”という表記は、全炭素数が1から6であるアルキル基を表し、

“C1-C4フルオロアルキル基”という表記は、対応する水素原子の全てあるいは一部がフッ素原子で置換されており、かつ全炭素数が1から4であるアルキル基を表し、

“C3-C7シクロアルキル”における“C3-C7”という表記は、環構造を構成する炭素原子と環構造を構成する炭素原子に結合するアルキル基の炭素原子とをあわせた全炭素数が3から7であることを表す。

#### 【0009】

Rで示されるC1-C4フルオロアルキル基としては、例えばトリフルオロメチル基、1-モノフルオロエチル基、2-モノフルオロエチル基、1, 1-ジフルオロエチル基、2, 2-ジフルオロエチル基、2, 2, 2-トリフルオロエチル基、1, 1, 2, 2-テトラフルオロエチル基、1, 2, 2-テトラフルオロエチル基、1, 1, 2, 2, 2-ペンタフルオロエチル基等のC1-C2フルオロアルキル基；

#### 【0010】

2-フルオロプロピル基、3-フルオロプロピル基、1, 1-ジフルオロプロピル基、2, 2-ジフルオロプロピル基、2, 3-ジフルオロプロピル基、3, 3-ジフルオロプロピル基、1, 2, 2-トリフルオロプロピル基、2, 2, 3-トリフルオロプロピル基、3, 3-トリフルオロプロピル基、1, 1, 2, 2-テトラフルオロプロピル基、2, 2, 3-テトラフルオロプロピル基、2, 3, 3-テトラフルオロプロピル基、2, 3, 3-ペンタフルオロプロピル基、1, 1, 2, 3, 3-ヘキサフルオロプロピル基等のC3フルオロアルキル基；

#### 【0011】

1-フルオロブチル基、2-フルオロブチル基、3-フルオロブチル基、4-フルオロブチル基、1, 1-ジフルオロブチル基、2, 2-ジフルオロブチル基、2, 3-ジフルオロブチル基、2, 4-ジフルオロブチル基、3, 3-ジフルオロブチル基、4, 4-ジフルオロブチル基、1, 2, 2-トリフルオロブチル基、2, 2, 3-トリフルオロブチル基、3, 3, 4-トリフルオロブチル基、3, 4, 4-トリフルオロブチル基、4, 4, 4-トリフルオロブチル基、1, 1, 2, 2-テトラフルオロブチル基、2, 2, 3, 3-テトラフルオロブチル基、3, 3, 4, 4-テトラフルオロブチル基、3, 4, 4, 4-テトラフルオロブチル基、3, 3, 4, 4-ペンタフルオロブチル基、2, 2, 3, 3, 4-ヘキサフルオロブチル基、1, 1, 2, 2, 3, 3-ヘキサフルオロブチル基、1, 1, 2, 2, 3, 3, 4-オクタフルオロブチル基等のC4フルオロアルキル基が挙げられる。

#### 【0012】

Qで示されるハロゲン原子としては、フッ素原子、塩素原子及び臭素原子が挙げられる。

#### 【0013】

Qで示されるハロゲン原子ハロゲン原子で置換されていてよいC1-C6アルキル基としては、例えばメチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、2-メチルプロピル基、1, 1-ジメチルエチル基、ペンチル基、イソペンチル基、ネオペンチル基、ヘキシル基、イソヘキシル基、3, 3-ジメチルブチル基、

#### 【0014】

モノフルオロメチル基、ジフルオロメチル基、トリフルオロメチル基、モノクロロメチル基、ジクロロメチル基、トリクロロメチル基、モノブロモメチル基、1-モノフルオロエチル基、2-モノフルオロエチル基、1-モノクロロエチル基、2-モノクロロエチル基、1-モノブロモエチル基、2-モノブロモエチル基、1, 1-ジフルオロエチル基、2, 2-ジフルオロエチル基、1, 1, 2, 2-テトラフルオロエチル基、1, 1, 2, 2, 2-ペンタフルオロエチル基、2-クロロ-1-メチルエチル基、1-フルオロプロピル基、2-フルオロプロピル基、3-フルオロプロピル基、3-クロロプロピル基、3-ブロモプロピル基、1, 1-ジフルオロプロピル基、2, 2-ジフルオロプロピル基、3, 3-ジフルオロプロピル基、2, 3, 3-トリフルオロプロピル基、3, 3, 3-トリフルオロプロピル基、3-クロロ-3-ジフルオロプロピル基、3, 3-ジクロロ-3-フルオロプロピル基、2, 2, 3, 3-テトラフルオロプロピル基、2, 2, 3, 3-ペンタ

フルオロプロピル基、1, 1, 2, 3, 3, 3-ヘキサフルオロプロピル基、1, 1, 2, 2, 3, 3, 3-ヘプタフルオロプロピル基、2-クロロ-3-ブロモ-2, 3, 3-トリフルオロプロピル基、3-ブロモ-2, 2, 3, 3-テトラフルオロプロピル基、2, 3, 3, 3-テトラフルオロ-2-(トリフルオロメチル)プロピル基、

## 【0015】

4-フルオロブチル基、4-クロロブチル基、4-ブロモブチル基、2-フルオロブチル基、2, 2-ジフルオロブチル基、3-フルオロブチル基、3, 3-ジフルオロブチル基、4, 4-ジフルオロブチル基、2, 2, 3-トリフルオロブチル基、2, 2, 3, 3-テトラフルオロブチル基、2, 2, 3, 4-テトラフルオロブチル基、3, 3, 4, 4-テトラフルオロブチル基、3-クロロ-3, 4, 4-トリフルオロブチル基、3-クロロ-3, 4, 4-ジクロロ-3, 4, 4-トリフルオロブチル基、2, 2, 3, 4, 4-ペンタフルオロブチル基、2, 2, 3, 4, 4-ヘキサフルオロブチル基、2, 2, 3, 3, 4, 4-ヘプタフルオロブチル基、3, 4, 4, 4-テトラフルオロ-3-(トリフルオロメチル)ブチル基、1, 1, 2, 2, 3, 3, 4, 4-オクタフルオロブチル基、

## 【0016】

5-フルオロペンチル基、5-クロロペンチル基、5-ブロモペンチル基、2-フルオロペンチル基、2-クロロペンチル基、2, 2-ジフルオロペンチル基、2, 3-ジフルオロペンチル基、2, 2-ジクロロペンチル基、2, 3-ジクロロペンチル基、3, 4-ジフルオロペンチル基、3, 4-ジクロロペンチル基、2, 2, 3-トリフルオロペンチル基、2, 2, 3, 3-ペンタフルオロフルオロペンチル基、2, 2, 3, 3, 4-ヘキサフルオロペンチル基、2, 2, 3, 3, 4, 4-ヘプタフルオロペンチル基、2, 2, 3, 3, 4, 4-オクタフルオロペンチル基、2, 2, 3, 3, 4, 5, 5-ノナフルオロペンチル基、3-フルオロペンチル基、3-クロロペンチル基、3, 3-ジフルオロペンチル基、3, 3-ジクロロペンチル基、3, 3, 4-トリフルオロペンチル基、

## 【0017】

3, 3, 4, 4-テトラフルオロペンチル基、3, 3, 4, 4, 5-ペンタフルオロペンチル基、3, 4, 5, 5-ペンタフルオロペンチル基、3, 4, 5, 5-ヘキサフルオロペンチル基、3, 3, 4, 4, 5-ヘプタフルオロペンチル基、4-フルオロペンチル基、4, 4-ジフルオロペンチル基、4, 4, 5-トリフルオロペンチル基、4, 4, 5, 5-テトラフルオロペンチル基、4, 4, 5, 5-ペンタフルオロペンチル基、5, 5-ジフルオロペンチル基、5, 5-トリフルオロペンチル基、

## 【0018】

6-フルオロヘキシル基、6-クロロヘキシル基、6-ブロモヘキシル基、2, 2-ジフルオロヘキシル基、3-フルオロヘキシル基、3, 3-ジフルオロヘキシル基、4-フルオロヘキシル基、4, 4-ジフルオロヘキシル基、5, 5-ジフルオロヘキシル基、2, 2, 3-トリフルオロヘキシル基、2, 2, 3, 3-ヘキサフルオロヘキシル基、2, 2, 3, 3, 4-ペンタフルオロフルオロヘキシル基、2, 2, 3, 3, 4, 4-ヘキサフルオロヘキシル基、2, 2, 3, 3, 4, 4, 5-ヘプタフルオロヘキシル基、2, 2, 3, 3, 4, 4, 5-オクタフルオロヘキシル基、2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5-ノナフルオロヘキシル基、2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5, 6, 6-デカフルオロヘキシル基、2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5, 6, 6-ウンデカフルオロヘキシル基、3-フルオロヘキシル基、1, 1, 2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5, 6, 6-ドデカフルオロヘキシル基、3, 3-ジフルオロヘキシル基、3, 3, 4-トリフルオロヘキシル基、3, 3, 4, 4, 4, 5-ペンタフルオロヘキシル基、3, 3, 4, 4, 5, 5-ヘキサフルオロヘキシル基、3, 3, 4, 4, 5, 5-ヘプタフルオロヘキシル基、4-フルオロヘキシル基、4, 4-ジフルオ

ロヘキシル基、4, 4, 5-トリフルオロヘキシル基、4, 4, 5, 5-ヘキサフルオロヘキシル基、4, 4, 5, 5, 6-ペンタフルオロヘキシル基、4, 4, 5, 5, 6, 6-ヘキサフルオロヘキシル基、4, 4, 5, 5, 6, 6-ヘプタフルオロヘキシル基、5-フルオロヘキシル基、5, 5-ジフルオロヘキシル基、5, 5, 6-トリフルオロヘキシル基、5, 5, 6, 6-ヘキサフルオロヘキシル基、5, 5, 6, 6, 6-ペンタフルオロヘキシル基、6, 6-ジフルオロヘキシル基及び6, 6, 6-トリフルオロヘキシル基が挙げられる。

### 【0019】

Qで示されるハロゲン原子で置換されていてもよいC2-C6アルケニル基としては、例えばビニル基、アリル基、1-プロペニル基、2-メチル-1-プロペニル基、2-メチル-2-プロペニル基、3-ブテニル基、2-ブテニル基、1-ブテニル基、3-メチル-2-ブテニル基、4-ペンテニル基、3-ペンテニル基、2-ペンテニル基、1-ペンテニル基、4-メチル-3-ペンテニル基、5-ヘキセニル基、4-ヘキセニル基、3-ヘキセニル基、2-ヘキセニル基、1-ヘキセニル基、

### 【0020】

1-フルオロビニル基、2-フルオロビニル基、1-クロロビニル基、2-クロロビニル基、2, 2-ジフルオロビニル基、2, 2-ジクロロビニル基、2, 2-ジブロモビニル基、2, 3, 3-トリフルオロ-2-プロペニル基、3, 3, 3-トリフルオロ-1-プロペニル基、4, 4-ジブロモ-3-ブテニル基、3, 4, 4-トリフルオロ-3-ブテニル基、4, 4, 4-トリフルオロ-2-ブテニル基、5, 5-ジフルオロ-4-ペンテニル基、4, 5, 5-トリフルオロ-4-ペンテニル基、5, 5, 5-トリフルオロ-3-ペンテニル基、6, 6-ジフルオロ-5-ヘキセニル基、5, 6, 6-トリフルオロ-5-ヘキセニル基及び6, 6, 6-トリフルオロ-4-ヘキセニル基が挙げられる。

### 【0021】

Qで示されるハロゲン原子で置換されていてもよいC2-C6アルキニル基としては例えばエチニル基、1-プロピニル基、2-プロピニル基、1-ブチニル基、2-ブチニル基、3-ブチニル基、1-ペンチニル基、2-ペンチニル基、3-ペンチニル基、4-ペンチニル基、1-ヘキシニル基、2-ヘキシニル基、3-ヘキシニル基、4-ヘキシニル基、5-ヘキシニル基、4, 4, 4-トリフルオロ-2-ブチニル基及び3-クロロ-2-プロピニル基が挙げられる。

### 【0022】

Qで示されるハロゲン原子で置換されていてもよいC3-C7シクロアルキル基としては、例えばシクロプロピル基、1-メチルシクロプロピル基、2-メチルシクロプロピル基、2, 2-ジメチルシクロプロピル基、2, 3-ジメチルシクロプロピル基、2, 2, 3-トリメチルシクロプロピル基、2, 2, 3-テトラメチルシクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロヘプチル基、1-フルオロシクロプロピル基、2-フルオロシクロプロピル基、2, 2-ジフルオロシクロプロピル基、2, 2, 3-トリフルオロシクロプロピル基、2, 2-ジクロロシクロプロピル基、4-(トリフルオロメチル)シクロヘキシル基、3-(フルオロメチル)シクロヘキシル基及び2, 2, 3-テトラクロロシクロプロピル基が挙げられる。

### 【0023】

Qで示されるハロゲン原子で置換されていてもよい(C3-C7シクロアルキル)C1-C4アルキル基としては、例えばシクロプロピルメチル基、2-(シクロプロピル)エチル基、3-(シクロプロピル)プロピル基、(1-メチルシクロプロピル)メチル基、2-(1-メチルシクロプロピル)エチル基、3-(1-メチルシクロプロピル)プロピル基、シクロブチルメチル基、2-(シクロブチル)エチル基、3-(シクロブチル)プロピル基、(2-フルオロシクロプロピル)メチル基、1-(2-フルオロシクロプロピル)エチル基、2-(1-フルオロシクロプロピル)エチル基、2-(2-フルオロシクロプロピル)エチル基、(2, 2-ジフルオロシクロプロピル)メチル基、2-(2, 2-

ージフルオロシクロプロピル) エチル基、1-(2,2-ジフルオロシクロプロピル) エチル基、(2,2,3,3-テトラフルオロシクロプロピル) メチル基、(2,2-ジクロロシクロプロピル) メチル基、2-(2,2-ジクロロシクロプロピル) エチル基、シクロペンチルメチル基、シクロヘキシルメチル基、1-(2,2,3-トリフルオロシクロプロピル) エチル基、1-(2,2,3,3-テトラフルオロシクロプロピル) エチル基、4-(シクロプロピル) ブチル基、3-(シクロプロピル) ブチル基、2-(シクロプロピル) ブチル基、4-(1-フルオロシクロプロピル) ブチル基、4-(2-フルオロシクロプロピル) ブチル基、4-(2,2-ジフルオロシクロプロピル) ブチル基、4-(2,2,3-トリフルオロシクロプロピル) ブチル基及び4-(2,2,3-テトラフルオロシクロプロピル) ブチル基が挙げられる。

#### 【0024】

本発明化合物の態様としては、例えば以下の化合物が挙げられる。

- 式(I)において、Rが2,2,2-トリフルオロエチル基であるニトリル化合物；
- 式(I)において、Rが1,1,2,2-テトラフルオロエチル基であるニトリル化合物；
- 式(I)において、Rが1,1,2,3,3-ヘキサフルオロプロピル基であるニトリル化合物；
- 式(I)において、Rが1,1,2,2,3,3,4,4-オクタフルオロブチル基であるニトリル化合物；
- 式(I)において、Rが2,3,3,3-テトラフルオロー-2-(トリフルオロメチル) プロピル基であるニトリル化合物；
- 式(I)において、Rがフッ素原子3～5個を有するC<sub>2</sub>～C<sub>4</sub>フルオロアルキル基であるニトリル化合物；
- 式(I)において、Rがフッ素原子6～8個を有するC<sub>3</sub>～C<sub>4</sub>フルオロアルキル基であるニトリル化合物；

#### 【0025】

- 式(I)において、Rがトリフルオロメチル基であるニトリル化合物；
- 式(I)において、RがC<sub>2</sub>フルオロアルキル基であるニトリル化合物；
- 式(I)において、Rが2-フルオロエチル基であるニトリル化合物；
- 式(I)において、Rが2,2-ジフルオロエチル基であるニトリル化合物；
- 式(I)において、Rが1,2,2,2-テトラフルオロエチル基であるニトリル化合物；
- 式(I)において、Rが1,1,2,2,2-ペンタフルオロエチル基であるニトリル化合物；

#### 【0026】

- 式(I)において、RがC<sub>3</sub>フルオロアルキル基であるニトリル化合物；
- 式(I)において、Rが2,2-ジフルオロプロピル基であるニトリル化合物；
- 式(I)において、Rが3,3,3-トリフルオロプロピル基であるニトリル化合物；
- 式(I)において、Rが1,1,2,2-テトラフルオロプロピル基であるニトリル化合物；
- 式(I)において、Rが2,2,3,3-テトラフルオロプロピル基であるニトリル化合物；
- 式(I)において、Rが2,2,3,3,3-ペンタフルオロプロピル基であるニトリル化合物；

#### 【0027】

- 式(I)において、RがC<sub>4</sub>フルオロアルキル基であるニトリル化合物；
- 式(I)において、Rが2,2-ジフルオロブチル基であるニトリル化合物；
- 式(I)において、Rが1,2,2-トリフルオロブチル基であるニトリル化合物；
- 式(I)において、Rが2,2,3-トリフルオロブチル基であるニトリル化合物；
- 式(I)において、Rが1,1,2,2-テトラフルオロブチル基であるニトリル化合物；
- 式(I)において、Rが2,2,3,3-テトラフルオロブチル基であるニトリル化合物；
- 式(I)において、Rが3,3,4,4-ペンタフルオロブチル基であるニトリル化合物；
- 式(I)において、Rが2,2,3,3,4,4-ヘキサフルオロブチル基であるニトリル化合物；
- 式(I)において、Rが1,1,2,2,3,3-ヘキサフルオロブチル基であるニトリル化合物；

#### 【0028】

- 式(I)において、Qがハロゲン原子であるニトリル化合物；
- 式(I)において、Qが臭素原子であるニトリル化合物；

式(I)において、Qが塩素原子であるニトリル化合物；

式(I)において、Qがフッ素原子であるニトリル化合物；

【0029】

式(I)において、Qがハロゲン原子で置換されていてもよいC1-C6アルキル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qがハロゲン原子で置換されていてもよいC1アルキル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qがメチル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qがモノフルオロメチル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qがジフルオロメチル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qがトリフルオロメチル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qがモノクロロメチル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qがジクロロメチル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qがモノブロモメチル基であるニトリル化合物；

【0030】

式(I)において、Qがハロゲン原子で置換されていてもよいC2アルキル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qがエチル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qが2-クロロ-1-メチルエチル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qが1-ブロモ-2,2,2-トリフルオロエチル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qが1-クロロ-2,2,2-トリフルオロエチル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qが1,1-ジメチルエチル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qが1-モノクロロエチル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qが2-モノクロロエチル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qが2-モノブロモエチル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qが2-モノフルオロエチル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qが2,2-ジフルオロエチル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qが2,2,2-トリフルオロエチル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qが1,1,2,2-テトラフルオロエチル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qが1,1,2,2,2-ペンタフルオロエチル基であるニトリル化合物；

【0031】

式(I)において、Qがハロゲン原子で置換されていてもよいC3アルキル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qがプロピル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qがイソプロピル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qが3-クロロプロピル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qが3-クロロ-2-プロピル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qが3-フルオロプロピル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qが3-ブロモプロピル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qが2-ブロモプロピル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qが2,3-ジクロロプロピル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qが2,2-ジフルオロプロピル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qが3,3,3-トリフルオロプロピル基であるニトリル化合物；

【0032】

式(I)において、Qが2,2,3,3-テトラフルオロプロピル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qが2,2,3,3,3-ペンタフルオロプロピル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qが1,1,2,3,3,3-ヘキサフルオロプロピル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qが<sup>1,1,2,2,3,3,3</sup>-ヘプタフルオロプロピル基であるニトリル化合物；

式(I)において、2,3-ジクロロ-2,3,3-トリフルオロプロピル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qが2-クロロ-3-ブロモ-2,3,3-トリフルオロプロピル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qが3-ブロモ-2,2,3,3-テトラフルオロプロピル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qが2-(トリフルオロメチル)-2,3,3,3-テトラフルオロプロピル基であるニトリル化合物；

### 【0033】

式(I)において、Qがハロゲン原子で置換されていてもよいC4アルキル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qがブチル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qがイソブチル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qが4-フルオロブチル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qが4-クロロブチル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qが2,2-ジフルオロブチル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qが4,4-ジフルオロブチル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qが4,4,4-トリフルオロブチル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qが4-ブロモ-3-クロロ-3,4,4-トリフルオロブチル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qが4-ブロモ-3,3,4,4-テトラフルオロブチル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qが3-(トリフルオロメチル)-3,4,4,4-テトラフルオロブチル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qが2,2,3,4,4,4-ヘキサフルオロブチル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qが3,3,4,4,4-ペンタフルオロブチル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qが2,2,3,3,4,4,4-ヘプタフルオロブチル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qが1,1,2,2,3,3,4,4-オクタフルオロブチル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qが1,1,2,2,3,3,4,4-ノナフルオロブチル基であるニトリル化合物；

### 【0034】

式(I)において、Qがハロゲン原子で置換されていてもよいC5アルキル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qがペンチル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qがイソペンチル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qが5,5,5-トリフルオロペンチル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qが3,3,4,4,5,5,5-ヘプタフルオロペンチル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qが2,2,3,3,4,4,5,5-オクタフルオロペンチル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qが2,2,3,3,4,4,5,5-ノナフルオロペンチル基であるニトリル化合物；

### 【0035】

式(I)において、Qがハロゲン原子で置換されていてもよいC6アルキル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qがヘキシル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qがインヘキシル基であるニトリル化合物；  
 式(I)において、Qが6,6,6-トリフルオロヘキシル基であるニトリル化合物；  
 式(I)において、Qが5,5,6,6,6-ペンタフルオロヘキシル基であるニトリル化合物；  
 式(I)において、Qが4,4,5,5,6,6,6-ヘプタフルオロヘキシル基であるニトリル化合物；  
 式(I)において、Qが3,3,4,4,5,5,6,6-オクタフルオロヘキシル基であるニトリル化合物；  
 式(I)において、Qが3,3,4,4,5,5,6,6-ノナフルオロヘキシル基であるニトリル化合物；  
 式(I)において、Qが1,1,2,2,3,3,4,4,5,5,6,6-ドデカフルオロヘキシル基であるニトリル化合物；

## 【0036】

式(I)において、Qがハロゲン原子で置換されていてもよいC2-C6アルケニル基であるニトリル化合物；  
 式(I)において、Qがハロゲン原子で置換されていてもよいビニル基であるニトリル化合物；  
 式(I)において、Qがビニル基であるニトリル化合物；  
 式(I)において、Qが1-メチルビニル基であるニトリル化合物；  
 式(I)において、Qが1-プロペニル基であるニトリル化合物；  
 式(I)において、Qが2-プロペニル基であるニトリル化合物；  
 式(I)において、Qが2,3,3-トリフルオロ-2-プロペニル基であるニトリル化合物；

## 【0037】

式(I)において、Qが1-ブテニル基であるニトリル化合物；  
 式(I)において、Qが2-ブテニル基であるニトリル化合物；  
 式(I)において、Qが3-メチル-2-ブテニル基であるニトリル化合物；  
 式(I)において、Qが4,4,4-トリフルオロ-2-ブテニル基であるニトリル化合物；  
 式(I)において、Qが3-ブテニル基であるニトリル化合物；  
 式(I)において、Qが3,4,4-トリフルオロ-3-ブテニル基であるニトリル化合物；

## 【0038】

式(I)において、Qがハロゲン原子で置換されていてもよいC2-C6アルキニル基であるニトリル化合物；  
 式(I)において、Qがエチニル基であるニトリル化合物；  
 式(I)において、Qが1-プロピニル基であるニトリル化合物；  
 式(I)において、Qが2-メチル-1-プロピニル基であるニトリル化合物；  
 式(I)において、Qが3,3,3-トリフルオロ-1-プロピニル基であるニトリル化合物；  
 式(I)において、Qが2-プロピニル基であるニトリル化合物；

## 【0039】

式(I)において、Qがハロゲン原子で置換されていてもよいC3-C7シクロアルキル基であるニトリル化合物；  
 式(I)において、Qがハロゲン原子で置換されていてもよいシクロプロピル基であるニトリル化合物；  
 式(I)において、Qがシクロプロピル基であるニトリル化合物；  
 式(I)において、Qが2,2-ジクロロシクロプロピル基であるニトリル化合物；  
 式(I)において、Qがハロゲン原子で置換されていてもよいシクロブチル基であるニトリル化合物；  
 式(I)において、Qがシクロブチル基であるニトリル化合物；  
 式(I)において、Qがハロゲン原子で置換されていてもよいシクロペンチル基であるニトリル化合物；  
 式(I)において、Qがシクロペンチル基であるニトリル化合物；  
 式(I)において、Qがハロゲン原子で置換されていてもよいシクロヘキシル基であるニ

トリル化合物；

式(I)において、Qがシクロヘキシル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qがハロゲン原子で置換されていてもよい(C3-C7シクロアルキル)C1-C4アルキル基であるニトリル化合物；

【0040】

式(I)において、Qがハロゲン原子で置換されていてもよいC4-C6アルキル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qがフッ素原子で置換されていてもよいC4-C6アルキル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qが6~8個のフッ素原子を有するC4-C6アルキル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qがハロゲン原子で置換されていてもよいC3-C4アルキル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qがフッ素原子で置換されていてもよいC3-C4アルキル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Qが6~8個のフッ素原子を有するC3-C4アルキル基であるニトリル化合物；

【0041】

式(I)において、Rがフッ素原子3~5個を有するC2-C4フルオロアルキル基であり、Qがハロゲン原子で置換されていてもよいC4-C6アルキル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Rがフッ素原子6~8個を有するC3-C4フルオロアルキル基であり、Qがハロゲン原子で置換されていてもよいC4-C6アルキル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Rがフッ素原子3~5個を有するC2-C4フルオロアルキル基であり、Qがフッ素原子で置換されていてもよいC4-C6アルキル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Rがフッ素原子6~8個を有するC3-C4フルオロアルキル基であり、Qがフッ素原子で置換されていてもよいC4-C6アルキル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Rがフッ素原子3~5個を有するC4-C6アルキル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Rがフッ素原子6~8個を有するC4-C6アルキル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Rがフッ素原子3~5個を有するC2-C4フルオロアルキル基であり、Qがハロゲン原子で置換されていてもよいC3-C4アルキル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Rがフッ素原子6~8個を有するC3-C4フルオロアルキル基であり、Qがフッ素原子で置換されていてもよいC3-C4アルキル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Rがフッ素原子3~5個を有するC2-C4フルオロアルキル基であり、Qが6~8個のフッ素原子を有するC3-C4アルキル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Rがフッ素原子6~8個を有するC3-C4フルオロアルキル基であり、Qがハロゲン原子で置換されていてもよいC3-C4アルキル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Rがフッ素原子3~5個を有するC2-C4フルオロアルキル基であり、Qがフッ素原子で置換されていてもよいC3-C4アルキル基であるニトリル化合物；

式(I)において、Rがフッ素原子6~8個を有するC3-C4フルオロアルキル基であり、Qが6~8個のフッ素原子を有するC3-C4アルキル基であるニトリル化合物；

## 【0042】

式(I)において、RがC<sub>2</sub>—C<sub>4</sub>フルオロアルキル基であり、Qがハロゲン原子で置換されていてもよいC<sub>1</sub>—C<sub>4</sub>アルキル基であるニトリル化合物；  
 式(I)において、RがC<sub>2</sub>フルオロアルキル基であり、Qがハロゲン原子で置換されていてもよいC<sub>1</sub>—C<sub>4</sub>アルキル基であるニトリル化合物；  
 式(I)において、Rが2,2,2—トリフルオロエチル基であり、Qがハロゲン原子で置換されていてもよいC<sub>1</sub>—C<sub>4</sub>アルキル基であるニトリル化合物；  
 式(I)において、RがC<sub>2</sub>—C<sub>4</sub>フルオロアルキル基であり、Qがハロゲン原子で置換されていてもよいC<sub>4</sub>アルキル基であるニトリル化合物；  
 式(I)において、RがC<sub>2</sub>—C<sub>4</sub>フルオロアルキル基であり、Qがハロゲン原子で置換されていてもよい1,1,2,2,3,3,4,4—オクタフルオロブチル基であるニトリル化合物；  
 式(I)において、RがC<sub>2</sub>フルオロアルキル基であり、Qがハロゲン原子で置換されていてもよいC<sub>4</sub>アルキル基であるニトリル化合物；  
 式(I)において、RがC<sub>2</sub>フルオロアルキル基であり、Qがハロゲン原子で置換されていてもよい1,1,2,2,3,3,4,4—オクタフルオロブチル基であるニトリル化合物；  
 式(I)において、RがC<sub>4</sub>フルオロアルキル基であり、Qがハロゲン原子で置換されていてもよい1,1,2,2,3,3,4,4—オクタフルオロブチル基であるニトリル化合物。

## 【0043】

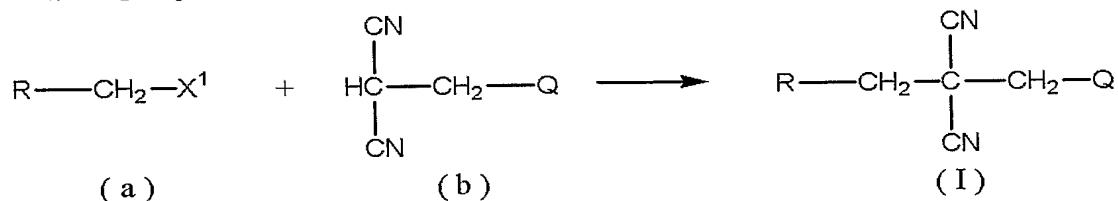
次に本発明化合物の製造法について説明する。

本発明化合物は例えば、以下の（製造法1）、（製造法2）又は（製造法3）にしたがって製造することができる。

## 【0044】

## (製造法1)

本発明化合物は、化合物(a)と化合物(b)とを反応させることにより製造することができる。



[式中、R及びQは前記と同じ意味を表し、X<sup>1</sup>は塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子、メタンスルホニルオキシ基、トルエンスルホニルオキシ基又はトリフルオロメタンスルホニルオキシ基を表す。]

該反応は、通常溶媒中、塩基の存在下で行われる。

反応に用いられる溶媒としては例えばヘキサン、ヘプタン、オクタン、シクロヘキサン等の脂肪族炭化水素、トルエン、キシレン、メシチレン等の芳香族炭化水素、ジエチルエーテル、メチルtert-ブチルエーテル、テトラヒドロフラン、1,4-ジオキサン等のエーテル、N,N-ジメチルホルムアミド等の酸アミド、ジメチルスルホキシド等のジアルキルスルホキシド及びこれらの混合物が挙げられる。

反応に用いられる塩基としては例えば炭酸ナトリウム、炭酸カリウム等の炭酸塩、水素化ナトリウム等のアルカリ金属水素化物及びトリエチルアミン、ジイソプロピルエチルアミン等の第三級アミンが挙げられる。

反応に用いられる化合物(a)の量は、化合物(b)1モルに対して通常1~10モルの割合である。

反応に用いられる塩基の量は、化合物(b)1モルに対して通常1~10モルの割合である。

該反応の反応温度は通常-20~100°Cの範囲であり、反応時間は通常0.1~24時間の範囲である。

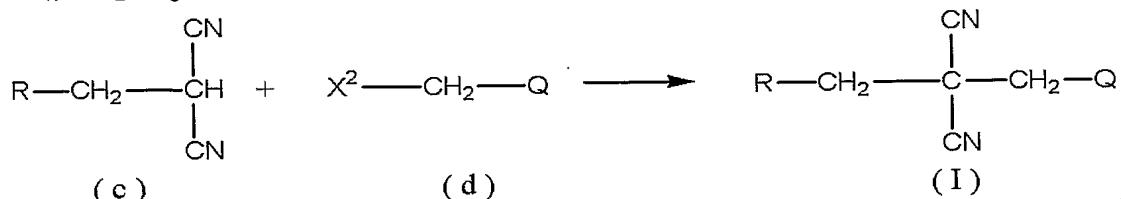
反応終了後は、反応混合物を水に注加し、有機溶媒抽出して得られた有機層を、乾燥、

濃縮する等の後処理操作を行うことにより、本発明化合物を単離することができる。単離した本発明化合物は必要に応じてクロマトグラフィー、再結晶等の操作により精製することもできる。

【0 0 4 5】

### (製造法2)

(製造法2)  
本発明化合物は、化合物(c)と化合物(d)とを反応させることにより製造することができる。



[式中、R及びQは前記と同じ意味を表し、X<sup>2</sup>は塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子、メタンスルホニルオキシ基、トルエンスルホニルオキシ基又はトリフルオロメタンスルホニルオキシ基を表す。]

該反応は、通常溶媒中、塩基の存在下で行われる。

反応に用いられる溶媒としては例えはヘキサン、ヘプタン、オクタン、シクロヘキサン等の脂肪族炭化水素、トルエン、キシレン、メシチレン等の芳香族炭化水素、ジエチルエーテル、メチルテートープチルエーテル、テトラヒドロフラン、1,4-ジオキサン等のエーテル、N,N-ジメチルホルムアミド等の酸アミド、ジメチルスルホキシド等のジアルキルスルホキシド及びこれらの混合物が挙げられる。

反応に用いられる塩基としては例えは炭酸ナトリウム、炭酸カリウム等の炭酸塩、水素化ナトリウム等のアルカリ金属水素化物及びトリエチルアミン、ジイソプロピルエチルアミン等の第三級アミンが挙げられる。

反応に用いられる化合物 (d) の量は、化合物 (c) 1 モルに対して通常 1 ~ 10 モルの割合である。

反応に用いられる塩基の量は、化合物 (c) 1 モルに対して通常 1 ~ 10 モルの割合である。

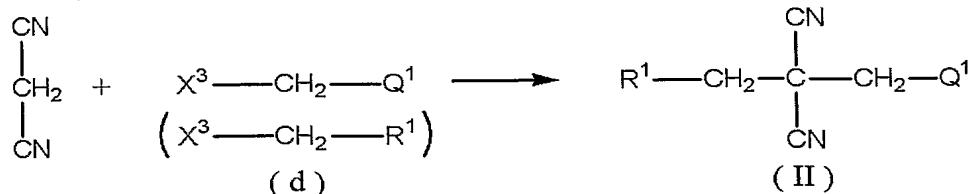
該反応の反応温度は通常-20~100°Cの範囲であり、反応時間は通常0.1~24時間の範囲である。

反応終了後は、反応混合物を水に注加し、有機溶媒抽出して得られた有機層を、乾燥、濃縮する等の後処理操作を行うことにより、本発明化合物を単離することができる。単離した本発明化合物は必要に応じてクロマトグラフィー、再結晶等の操作により精製することもできる。

[0 0 4 6]

(製造法3)

本発明化合物のうち、QがRと同一のC1-C4フルオロアルキル基である化合物(I)は、化合物(e)とマロノニトリルとを反応させることにより製造することもできる。



[式中、R<sup>1</sup>及びQ<sup>1</sup>は同一のC1-C4フルオロアルキル基を表し、X<sup>3</sup>は塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子、トルエンスルホニルオキシ基、トリフルオロメタンスルホニルオキシ基を表す。]

該反応は、通常溶媒中、塩基の存在下で行われる。

該反応は、通常倍数、<sup>1</sup>重複反応に用いられる塗膜<sup>2</sup>としては例えばヘキサン、ヘプタン、オクタン、シクロヘキサン

等の脂肪族炭化水素、トルエン、キシレン、メチルエーテル、テトラヒドロフラン、1,4-ジオキサン等のエーテル、N,N-ジメチルホルムアミド等の酸アミド、ジメチルスルホキシド等のジアルキルスルホキシド及びこれらの混合物が挙げられる。

反応に用いられる塩基としては例えば炭酸ナトリウム、炭酸カリウム等の炭酸塩、水素化ナトリウム等のアルカリ金属水素化物及びトリエチルアミン、ジイソプロピルエチルアミン等の第三級アミンが挙げられる。

反応に用いられる試剤の量は、化合物 (e) 1 モルに対して、マロノニトリルが通常 0.3 ~ 1 モルの割合であり、塩基が通常 0.6 ~ 5 モルの割合である。

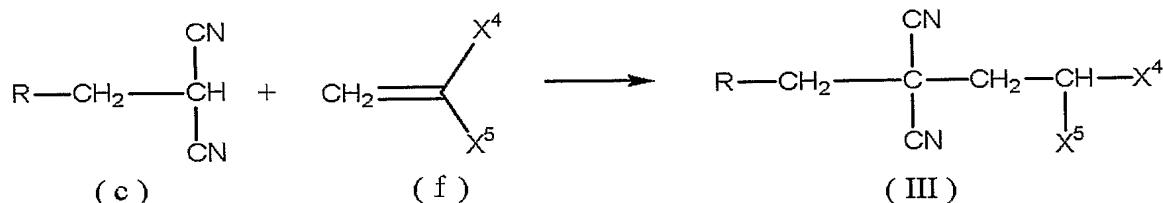
該反応の反応温度は通常-20~100℃の範囲であり、反応時間は通常0.1~36時間の範囲である。

反応終了後は、反応混合物を水に注加し、有機溶媒抽出して得られた有機層を、乾燥、濃縮する等の後処理操作を行うことにより、化合物（II）を単離することができる。単離した化合物（II）は必要に応じてクロマトグラフィー、再結晶等の操作により精製することもできる。

[0 0 4 7]

(製造法4)

(表達法1)  
本発明化合物のうち化合物(I II)は、化合物(c)と化合物(e)とを反応させることにより製造することもできる。



[式中、Rは前記と同じ意味を表し、X<sup>4</sup>はC1-C5パーカルオロアルキル基を表し、X<sup>5</sup>はハロゲン原子を表す。]

該反応は、通常溶媒中、塩基の存在下で行われる。

該反応は、通常溶媒中、温差の有無によらず、常に可逆的である。

反応に用いられる溶媒としては例えはヘキサン、ヘプタン、オクタン、シクロヘキサン等の脂肪族炭化水素、トルエン、キシレン、メチルベンゼン等の芳香族炭化水素、ジエチルエーテル、メチル *t*-ブチルエーテル、テトラヒドロフラン、1, 4-ジオキサン等のエーテル、N, N-ジメチルホルムアミド等の酸アミド、ジメチルスルホキシド等のジアルキルスルホキシド及びこれらの混合物が挙げられる。

反応に用いられる塩基としては例えば炭酸ナトリウム、炭酸カリウム等の炭酸塩、フッ化カリウム、テトラブチルアンモニウムトリフルオリド等のフッ化物塩、水素化ナトリウム等のアルカリ金属水素化物及びトリエチルアミン、ジイソプロピルエチルアミン等の第三級アミンが挙げられる。

反応に用いられる試剤の量は、化合物 (c) 1モルに対して化合物 (f) が通常 1~1.0 モルの割合であり、塩基が通常 0.6~5 モルの割合である。

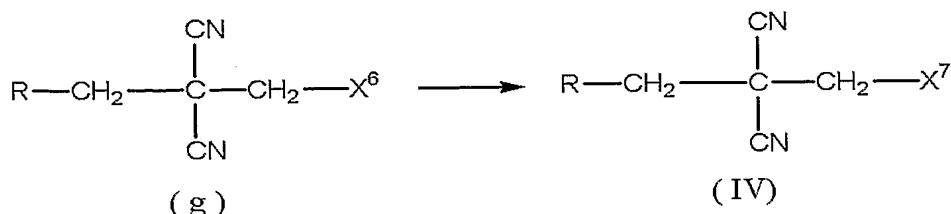
該反応の反応温度は通常-20~100℃の範囲であり、反応時間は通常0.1~36時間の範囲である。

反応終了後は、反応混合物を水に注加し、有機溶媒抽出して得られた有機層を、乾燥、濃縮する等の後処理操作を行うことにより、化合物（III）を単離することができる。単離した化合物（III）は必要に応じてクロマトグラフィー、再結晶等の操作により精製することもできる。

[0048]

(製造法 5 )

本発明化合物のうち化合物（IV）は、化合物（g）をフッ素化剤と反応することにより製造することもできる。



[式中、Rは前記と同じ意味を表し、X<sup>6</sup>はオキソC1-C6アルキル基、ヒドロキシC1-C6アルキル基、オキソC3-C6アルケニル基、ヒドロキシC3-C6アルケニル基、オキソC4-C6アルキニル基、ヒドロキシC4-C6アルキニル基、オキソC3-C7シクロアルキル基、ヒドロキシC3-C7シクロアルキル基、オキソ(C3-C7シクロアルキル)C1-C4アルキル基又はヒドロキシ(C3-C7シクロアルキル)C1-C4アルキル基を表し、X<sup>7</sup>はフルオロC1-C6アルキル基、フルオロC3-C6アルケニル基、フルオロC4-C6アルキニル基、フルオロC3-C7アルキル基、フルオロ(C3-C7シクロアルキル)C1-C4アルキル基を表す。]

該反応は、溶媒中又は無溶媒で行われる。

反応に用いられる溶媒としては例えばヘキサン、ヘプタン、オクタン、シクロヘキサン等の脂肪族炭化水素、四塩化炭素、クロロホルム、ジクロロメタン等のハロゲン化炭化水素及びこれらの混合物が挙げられる。

反応に用いられるフッ素化剤としては例えばジエチルアミノサルファトリフルオリド、2-クロロ-1,1,2-トリフルオロエチルジエチルアミン等のフッ素化剤が挙げられる。

反応に用いられるフッ素化剤の量は、化合物(g) 1モルに対して通常1~10モルの割合である。

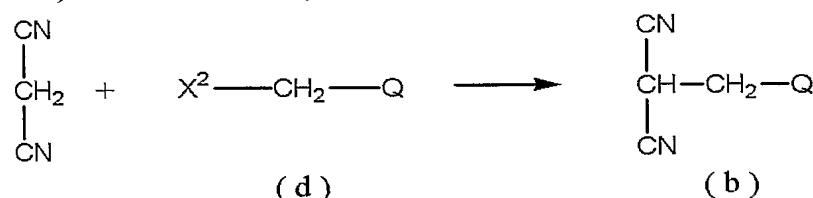
該反応の反応温度は通常-20~100℃の範囲であり、反応時間は通常0.1~36時間の範囲である。

反応終了後は、反応混合物を水に注加し、有機溶媒抽出して得られた有機層を、乾燥、濃縮する等の後処理操作を行うことにより、化合物(IV)を単離することができる。単離した化合物(IV)は必要に応じてクロマトグラフィー、再結晶等の操作により精製することもできる。

#### 【0049】

次に本発明化合物の製造中間体の製造について説明する。

化合物(b)は、例えば化合物(d)とマロノニトリルとを反応させることにより製造することができる。



[式中、Q及びX<sup>2</sup>は前記と同じ意味を表す。]

該反応は、通常溶媒中、塩基の存在下で行われる。

反応に用いられる溶媒としては例えばヘキサン、ヘプタン、オクタン、シクロヘキサン等の脂肪族炭化水素、トルエン、キシレン、メシチレン等の芳香族炭化水素、ジエチルエーテル、メチルtert-ブチルエーテル、テトラヒドロフラン、1,4-ジオキサン等のエーテル、N,N-ジメチルホルムアミド等の酸アミド及びこれらの混合物が挙げられる。

反応に用いられる塩基としては例えば炭酸ナトリウム、炭酸カリウム等の炭酸塩、水素化ナトリウム等のアルカリ金属水素化物及びトリエチルアミン、ジイソプロピルエチルアミン等の第三級アミンが挙げられる。

反応に用いられる試剤の量は、化合物(d) 1モルに対して、マロノニトリルが通常1

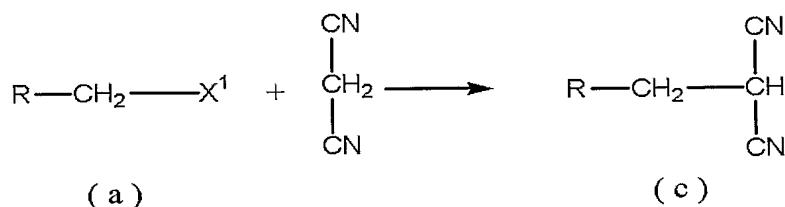
～10モルの割合であり、塩基が通常0.5～5モルの割合である。

該反応の反応温度は通常-20～100℃の範囲であり、反応時間は通常0.1～24時間の範囲である。

反応終了後は、反応混合物を水に注加し、有機溶媒抽出して得られた有機層を、乾燥、濃縮する等の後処理操作を行うことにより、化合物(c)を単離することができる。単離した化合物(c)は必要に応じてクロマトグラフィー、再結晶等の操作により精製することもできる。

#### 【0050】

化合物(c)は、例えば化合物(a)とマロノニトリルとを反応させることにより製造することができる。



[式中、R及びX<sup>1</sup>は前記と同じ意味を表す。]

該反応は、通常溶媒中、塩基の存在下で行われる。

反応に用いられる溶媒としては例えばヘキサン、ヘプタン、オクタン、シクロヘキサン等の脂肪族炭化水素、トルエン、キシレン、メチレン等の芳香族炭化水素、ジエチルエーテル、メチルtert-ブチルエーテル、テトラヒドロフラン、1,4-ジオキサン等のエーテル、N,N-ジメチルホルムアミド等の酸アミド及びこれらの混合物が挙げられる。

反応に用いられる塩基としては例えば炭酸ナトリウム、炭酸カリウム等の炭酸塩、水素化ナトリウム等のアルカリ金属水素化物及びトリエチルアミン、ジイソプロピルエチルアミン等の第三級アミンが挙げられる。

反応に用いられる試剤の量は、化合物(a)1モルに対して、マロノニトリルが通常1～10モルの割合であり、塩基が通常0.5～5モルの割合である。

該反応の反応温度は通常-20～100℃の範囲であり、反応時間は通常0.1～24時間の範囲である。

反応終了後は、反応混合物を水に注加し、有機溶媒抽出して得られた有機層を、乾燥、濃縮する等の後処理操作を行うことにより、化合物(c)を単離することができる。単離した化合物(c)は必要に応じてクロマトグラフィー、再結晶等の操作により精製することもできる。

#### 【0051】

また、化合物(c)はJ. Chem. Soc. Perkin Trans. 1, 2589-2592(1991)に記載された方法により製造することもできる。

#### 【0052】

本発明化合物が防除効力を示す有害生物としては、例えば昆虫及びダニ等の節足動物、並びに線虫が挙げられる。より具体的には例えば下記のものが挙げられる。

#### 【0053】

半翅目害虫：ヒメトビウンカ(Laodelphax striatellus)、トビイロウンカ(Nilaparvata lugens)、セジロウンカ(Sogatella furcifera)等のウンカ類、ツマグロヨコバイ(Nephrotettix cincticeps)、タイワンツマグロヨコバイ(Nephrotettix virescens)等のヨコバイ類、ワタアブラムシ(Aphis gossypii)、モモアカアブラムシ(Myzus persicae)等のアブラムシ類、アオクサカメムシ(Nezara antennata)、ホソヘリカメムシ(Riptortus clavatus)、オオトゲシラホシカメムシ(Eysarcoris lewisi)、トゲシラホシカメムシ(Eysarcoris parvus)、チャバネアオカメムシ(Plautia stali)、クサギカメムシ(Halyomorpha mista)等のカメムシ類、オンシツコナジラミ(Trialeurodes vaporariorum)、シルバーリーフコナジラミ(Bemisia argentifolii)等のコナジラミ類、アカマル

カイガラムシ (*Aonidiella aurantii*)、サンホーゼカイガラムシ (*Comstockaspis perniciosa*)、シトラススノースケール (*Unaspis citri*)、ルビーロウムシ (*Ceroplastes rubens*)、イセリヤカイガラムシ (*Icerya purchasi*) 等のカイガラムシ類、グンバイムシ類、トコジラミ (*Cimex lectularius*) 等のトコジラミ類、キジラミ類等；

#### 【0054】

鱗翅目害虫：ニカメイガ (*Chilo suppressalis*)、コブノメイガ (*Cnaphalocrocis medinalis*)、ワタノメイガ (*Notarcha derogata*)、ノシメマダラメイガ (*Plodia interpunctella*) 等のメイガ類、ハスモンヨトウ (*Spodoptera litura*)、アワヨトウ (*Pseudaletia separata*)、トリコブルシア属、ヘリオティス属、ヘリコベルバ属等のヤガ類、モンシロチョウ (*Pieris rapae*) 等のシロチョウ類、アドキソフィエス属、ナシヒメシンクイ (*Grapholita molesta*)、コドリンガ (*Cydia pomonella*) 等のハマキガ類、モモシンクイガ (*Carposina niponensis*) 等のシンクイガ類、リオネティア属等のハモグリガ類、リマントリア属、ユープロクティス属等のドクガ類、コナガ (*Plutella xylostella*) 等のスガ類、ワタアカミムシ (*Pectinophora gossypiella*) 等のキバガ類、アメリカシロヒトリ (*Hyphantria cunea*) 等のヒトリガ類、イガ (*Tinea translucens*)、コイガ (*Tineola biselliella*) 等のヒロズコガ類等；

#### 【0055】

双翅目害虫：アカイエカ (*Culex pipiens pallens*)、コガタアカイエカ (*Culex tritaeniorhynchus*)、ネッタタイエカ (*Culex quinquefasciatus*) 等のイエカ類、ネッタタイシマカ (*Aedes aegypti*)、ヒトスジシマカ (*Aedes albopictus*) 等のエーデス属、(*Anopheles sinensis*) 等のアノフェレス属、ユスリカ類、イエバエ (*Musca domestica*)、オオイエバエ (*Muscina stabulans*) 等のイエバエ類、クロバエ類、ニクバエ類、ヒメイエバエ類、タネバエ (*Delia platura*)、タマネギバエ (*Delia antiqua*) 等のハナバエ類、ミバエ類、ショウジョウバエ類、オオキモシノミバエ (*Megaselia spiracularis*) 等のノミバエ類、オオチョウバエ (*Clogmia albipunctata*) チョウバエ類、ブユ類、アブ類、サシバエ類、ハモグリバエ類等；

#### 【0056】

鞘翅目害虫：ウエスタンコーンルートワーム (*Diabrotica virgifera virgifera*)、サザンコーンルートワーム (*Diabrotica undecimpunctata howardi*) 等のコーンルートワーム類、ドウガネブイブイ (*Anomala cuprea*)、ヒメコガネ (*Anomala rufocuprea*) 等のコガネムシ類、メイズウイービル (*Sitophilus zeamais*)、イネミズゾウムシ (*Lissorhoptrus oryzophilus*)、アズキゾウムシ (*Callosobruchus chienensis*) 等のゾウムシ類、チャイロコメノゴミムシダマシ (*Tenebrio molitor*)、コクヌストモドキ (*Tribolium castaneum*) 等のゴミムシダマシ類、イネドロオイムシ (*Oulema oryzae*)、ウリハムシ (*Aula cophora femoralis*)、キスジノミハムシ (*Phyllotreta striolata*)、コロラドハムシ (*Leptinotarsa decemlineata*) 等のハムシ類、ハラジロカツオブシムシ (*Dermestes maculatus*) 等のカツオブシムシ類、シバンムシ類、ニジュウヤホシテントウ (*Epilachna vigintioctopunctata*) 等のエピラクナ類、ヒラタキクイムシ類、ナガシンクイムシ類、ヒヨウホンムシ類、カミキリムシ類、アオバアリガタハネカクシ (*Paederus fuscipes*) 等。

ゴキブリ目害虫：チャバネゴキブリ (*Blattella germanica*)、クロゴキブリ (*Periplaneta fuliginosa*)、ワモンゴキブリ (*Periplaneta americana*)、トビイロゴキブリ (*Periplaneta brunnea*)、トウヨウゴキブリ (*Blatta orientalis*) 等；

#### 【0057】

アザミウマ目害虫：ミナミキイロアザミウマ (*Thrips palmi*)、ネギアザミウマ (*Thrips tabaci*)、ミカンキイロアザミウマ (*Frankliniella occidentalis*)、ヒラズハナアザミウマ (*Frankliniella intonsa*) 等；

膜翅目害虫：イエヒメアリ (*Monomorium pharaosis*)、クロヤマアリ (*Formica fusca japonica*)、ルリアリ (*Ochetellus glaber*)、アミメアリ (*Pristomyrmex pungens*)、オオズアリ (*Pheidole noda*) 等のアリ類、スズメバチ類、アリガタバチ類、ニホンカブラバチ (*Athalia japonica*) 等のハバチ類等；

直翅目害虫：ケラ類、バッタ類等；

隱翅目害虫：ネコノミ (*Ctenocephalides felis*)、イヌノミ (*Ctenocephalides canis*)、ヒトノミ (*Pulex irritans*)、ケオプスネズミノミ (*Xenopsylla cheopis*) 等。

シラミ目害虫：コロモジラミ (*Pediculus humanus corporis*)、ケジラミ (*Phthirus pubis*)、ウシジラミ (*Haematopinus eurysternus*)、ヒツジジラミ (*Dalmalinia ovis*) 等；シロアリ目害虫：ヤマトシロアリ (*Reticulitermes speratus*)、イエシロアリ (*Coptotermes formosanus*)、イースタンサブテラニアンターマイト (*Reticulitermes flavipes*)、ウエスタンサブテラニアンターマイト (*Reticulitermes hesperus*)、ダークザンサブテラニアンターマイト (*Reticulitermes virginicus*)、アリッドランドサブテラニアントーマイト (*Reticulitermes tibialis*)、デザートサブテラニアンターマイト (*Heterotermes aureus*) 等のサブテラニアンターマイト類、アメリカカンザイシロアリ (*Incisitermes minor*) 等のドライウッドターマイト類、およびネバダダンプウッドターマイト (*Zootermopsis nevadensis*) 等のダンプウッドターマイト類等；

#### 【0058】

ダニ目害虫：ナミハダニ (*Tetranychus urticae*)、カンザワハダニ (*Tetranychus kanza wai*)、ミカンハダニ (*Panonychus citri*)、リンゴハダニ (*Panonychus ulmi*)、オリゴニカス属等のハダニ類、ミカンサビダニ (*Aculops pelekassi*)、リンゴサビダニ (*Aculops schlechtendali*) 等のフシダニ類、チャノホコリダニ (*Polyphagotarsonemus latus*) 等のホコリダニ類、ヒメハダニ類、ケナガハダニ類、フトトゲチマダニ (*Haemaphysalis longicornis*)、キチマダニ (*Haemaphysalis flava*)、アメリカンドッグチック (*Dermacentor variabilis*)、ヤマトマダニ (*Ixodes ovatus*)、シェルツマダニ (*Ixodes persulcatus*)、ブラックレッグドチック (*Ixodes scapularis*)、オウシマダニ (*Boophilus microplus*)、ローンスターチック (*Amblyomma americanum*)、クリイロコイタマダニ (*Rhipicephalus sanguineus*) 等のマダニ類、ケナガコナダニ (*Tyrophagus putrescentiae*) 等のコナダニ類、コナヒヨウヒダニ (*Dermatophagoides farinae*)、ヤケヒヨウヒダニ (*Dermatophagoidea ptreyssnus*) 等のヒヨウヒダニ類、ホソツメダニ (*Cheyletus eruditus*)、クワガタツメダニ (*Cheyletus malaccensis*)、ミナミツメダニ (*Cheyletus moorei*) 等のツメダニ類、イエダニ (*Ornithonyssus bacoti*)、トリサシダニ (*Ornithonyssus sylvairum*)、ワクモ (*Dermanyssus gallinae*) 等のワクモ類、アオツツガムシ (*Leptotrombidium akamushi*) 等のツツガムシ類等；

#### 【0059】

クモ類：カバキコマチグモ (*Chiracanthium japonicum*)、セアカゴケグモ (*Latrodectus hasseltii*) 等；

唇脚綱類：ゲジ (*Thereuonema hilgendorfi*)、トビスマカデ (*Scolopendra subspinipes*) 等；

倍脚綱類：ヤケヤステ (*Oxidus gracilis*)、アカヤステ (*Nedyopus tambanus*) 等；

等脚目類：オカダンゴムシ (*Armadillidium vulgare*) 等；

腹足綱類：チャコウラナメクジ (*Limax marginatus*)、キイロコウラナメクジ (*Limax flavus*) 等；

線虫類：ミナミネグサレセンチュウ (*Pratylenchus coffeae*)、キタネグサレセンチュウ (*Pratylenchus fallax*)、ダイズシストセンチュウ (*Heterodera glycines*)、ジャガイモシストセンチュウ (*Globodera rostochiensis*)、キタネコブセンチュウ (*Meloidogyne hapla*)、サツマイモネコブセンチュウ (*Meloidogyne incognita*) 等。

#### 【0060】

本発明の有害生物防除剤は本発明化合物そのものであってもよいが、一般的には、本発明化合物と、固体担体、液体担体及び／又はガス状担体とを混合し、更に必要に応じて界面活性剤その他の製剤用補助剤を添加して得られる製剤、並びに固体担体に本発明化合物を担持させてなる製剤である。製剤としては、例えは乳剤、油剤、シャンプー剤、フロアブル剤、粉剤、水和剤、粒剤、ペースト状製剤、マイクロカプセル製剤、泡沫剤、エアゾール製剤、炭酸ガス製剤、錠剤、樹脂製剤、紙製剤、不織布製剤、編織物製剤等の形態が

あげられ、これらの製剤は、毒餌、殺虫線香、電気殺虫マット、燐煙剤、燐蒸剤、シート等に加工されて、使用されることもある。

#### 【0061】

本発明の有害生物防除剤は、本発明化合物を通常0.01～98重量%含有する。製剤化の際に用いられる固体担体としては、例えば粘土類（カオリンクレー、珪藻土、ベントナイト、フバサミクレー、酸性白土等）、合成含水酸化珪素、タルク、セラミック、その他の無機鉱物（セリサイト、石英、硫黄、活性炭、炭酸カルシウム、水和シリカ等）、化学肥料（硫安、燐安、硝安、塩安、尿素等）等の微粉末及び粒状物、常温で固体の物質（2,4,6-トリイソプロピル-1,3,5-トリオキサン、ナフタリン、p-ジクロロベンゼン、樟脑、アダマンタン等）、並びに羊毛、絹、綿、麻、パルプ、合成樹脂（例えば、低密度ポリエチレン、直鎖状低密度ポリエチレン、高密度ポリエチレン等のポリエチレン系樹脂；エチレン-酢酸ビニル共重合体等のエチレン-ビニルエステル共重合体；エチレン-メタクリル酸メチル共重合体、エチレン-メタクリル酸エチル共重合体等のエチレン-メタクリル酸エステル共重合体；エチレン-アクリル酸メチル共重合体、エチレン-アクリル酸エチル共重合体等のエチレン-アクリル酸エステル共重合体；エチレン-アクリル酸共重合体等のエチレン-ビニルカルボン酸共重合体；エチレン-テトラシクロドデセン共重合体；プロピレン単独重合体、プロピレン-エチレン共重合体等のポリプロピレン系樹脂；ポリ-4-メチルペンテン-1、ポリブテン-1、ポリブタジエン、ポリスチレン；アクリロニトリル-スチレン樹脂；アクリロニトリル-ブタジエン-スチレン樹脂、スチレン-共役ジエンブロック共重合体、スチレン-共役ジエンブロック共重合体水素添加物等のスチレン系エラストマー；フッ素樹脂；ポリメタクリル酸メチル等のアクリル系樹脂；ナイロン6、ナイロン6.6等のポリアミド系樹脂；ポリエチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリシクロヘキシレンジメチレンテレフタレート等のポリエステル系樹脂；ポリカーボネート、ポリアセタール、ポリアクリルサルフォン、ポリアリレート、ヒドロキシ安息香酸ポリエステル、ポリエーテルイミド、ポリエステルカーボネート、ポリフェニレンエーテル樹脂、ポリ塩化ビニル、ポリ塩化ビニリデン、ポリウレタン、発泡ポリウレタン、発泡ポリプロピレン、発泡エチレン等の多孔質樹脂）、ガラス、金属、セラミック等の1種または2種以上からなるフェルト、繊維、布、編物、シート、紙、糸、発泡体、多孔質体及びマルチフィラメントが挙げられる。

#### 【0062】

液体担体としては、例えば芳香族または脂肪族炭化水素類（キシレン、トルエン、アルキルナフタレン、フェニルキシリルエタン、ケロシン、軽油、ヘキサン、シクロヘキサン等）、ハロゲン化炭化水素類（クロロベンゼン、ジクロロメタン、ジクロロエタン、トリクロロエタン等）、アルコール類（メタノール、エタノール、イソプロピルアルコール、ブタノール、ヘキサノール、ベンジルアルコール、エチレングリコール等）、エーテル類（ジエチルエーテル、エチレングリコールジメチルエーテル、ジエチレングリコールモノメチルエーテル、ジエチレングリコールモノエチルエーテル、プロピレングリコールモノメチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン等）、エステル類（酢酸エチル、酢酸ブチル等）、ケトン類（アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、シクロヘキサン等）、ニトリル類（アセトニトリル、イソブチロニトリル等）、スルホキシド類（ジメチルスルホキシド等）、酸アミド類（N,N-ジメチルホルムアミド、N,N-ジジメチルアセトアミド、N-メチルピロリドン等）、炭酸アルキリデン類（炭酸プロピレン等）、植物油（大豆油、綿実油等）、植物精油（オレンジ油、ヒソップ油、レモン油等）および水などが挙げられる。

#### 【0063】

ガス状担体としては、例えばブタンガス、フロンガス、液化石油ガス（LPG）、ジメチルエーテル、炭酸ガス等を挙げることができる。

#### 【0064】

界面活性剤としては、例えばアルキル硫酸エステル塩、アルキルスルホン酸塩、アルキ

ルアリールスルホン酸塩、アルキルアリールエーテル類及びそのポリオキシエチレン化物、ポリエチレングリコールエーテル類、多価アルコールエステル類及び糖アルコール誘導体が挙げられる。

#### 【0065】

その他の製剤用補助剤としては、固着剤、分散剤及び安定剤等、具体的には例えばカゼイン、ゼラチン、多糖類（澱粉、アラビアガム、セルロース誘導体、アルギン酸等）、リグニン誘導体、ペントナイト、糖類、合成水溶性高分子（ポリビニルアルコール、ポリビニルピロリドン、ポリアクリル酸類等）、PAP（酸性リン酸イソプロピル）、BHT（2,6-ジ-*t*-ブチル-4-メチルフェノール）、BHA（2-*t*-ブチル-4-メトキシフェノールと3-*t*-ブチル-4-メトキシフェノールとの混合物）、植物油、鉱物油、脂肪酸及び脂肪酸エステルが挙げられる。

#### 【0066】

樹脂製剤の基材としては、例えば、低密度ポリエチレン、直鎖状低密度ポリエチレン、高密度ポリエチレン等のポリエチレン系樹脂；エチレン-酢酸ビニル共重合体等のエチレン-ビニルエステル共重合体；エチレン-メタクリル酸メチル共重合体、エチレン-メタクリル酸エチル共重合体等のエチレン-メタクリル酸エチル共重合体；エチレン-アクリル酸メチル共重合体、エチレン-アクリル酸エチル共重合体等のエチレン-アクリル酸エステル共重合体；エチレン-アクリル酸共重合体等のエチレン-ビニルカルボン酸共重合体；エチレン-テトラシクロドデセン共重合体；プロピレン共重合体、プロピレン-エチレン共重合体等のポリプロピレン系樹脂；ポリ-4-メチルペンテン-1、ポリブテン-1、ポリブタジエン、ポリスチレン、アクリロニトリル-スチレン樹脂；アクリロニトリル-ブタジエン-スチレン樹脂、スチレン-共役ジエン共重合体、スチレン-共役ジエンブロック共重合体水素添加物等のスチレン系エラストマー；フッ素樹脂；ポリメタクリル酸メチル等のアクリル酸樹脂；ナイロン6、ナイロン66等のポリアミド系樹脂；ポリエチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート、ポリブチレンブタレート、ポリシクロヘキシレンジメチレンテレフタレート等のポリエステル系樹脂；ポリカーボネート、ポリアセタール、ポリアクリルサルファン、ポリアリレート、ヒドロキシ安息香酸ポリエステル、ポリエーテルイミド、ポリエステルカーボネート、ポリフェニレンエーテル樹脂、ポリ塩化ビニル、ポリ塩化ビニリデン、ポリウレタンが挙げられ、これらの基材は、単独で用いても2種以上の混合物として用いても良く、これらの基材には必要によりフタル酸エステル類（フタル酸ジメチル、フタル酸ジオクチル等）、アジピン酸エステル類、ステアリン酸等の可塑剤が添加されていてもよい。樹脂製剤は該基材中に化合物を通常の混練装置を用いて混練した後、射出成型、押出成型、プレス成型等により成型することにより得られ、必要により更に成型、裁断等の工程を経て、板状、フィルム状、テープ状、網状、ひも状等の樹脂製剤に加工できる。これらの樹脂製剤は、例えば動物用首輪、動物用イヤータグ、シート製剤、誘引ひも、園芸用支柱として加工される。

#### 【0067】

毒餌の基材としては、例えば穀物粉、植物油、糖、結晶セルロース等が挙げられ、更に必要に応じて、ジブチルヒドロキシトルエン、ノルジヒドログアイアレチン酸等の酸化防止剤、デヒドロ酢酸等の保存料、トウガラシ末等の子供やペットによる誤食防止剤、チーズ香料、タマネギ香料ピーナツオイル等の害虫誘引性香料等が添加される。

#### 【0068】

本発明化合物の有効量を、有害生物に直接、及び／または有害生物の生息場所（植物体、動物体、土壤等）に施用することにより、有害生物を防除することができる。通常、本発明化合物として、本発明の有害生物防除剤の製剤を使用する。

#### 【0069】

本発明の有害生物防除剤を農林害虫の防除に用いる場合は、その施用量は有効成分量として通常1～100000g/h aである。乳剤、水和剤、フロアブル剤、マイクロカプセル製剤等は通常有効成分濃度が0.01～1000ppmとなるように水で希釈して使用し、油剤、粉剤、粒剤等は通常そのまま使用する。これらの製剤を有害生物から保護す

べき植物に対して直接散布してもよい。これらの製剤を土壤に処理することにより土壤に棲息する有害生物を防除することもでき、またこれらの製剤を植物を植え付ける前の苗床に処理したり、植付時に植穴や株元に処理することもできる。さらに、本発明の有害生物防除剤のシート製剤を植物に巻き付けたり、植物の近傍に設置したり、株元の土壤表面に敷くなどの方法でも施用することができる。

#### 【0070】

本発明の有害生物防除剤を防疫用として用いる場合は、その施用量は空間に適用するときは有効成分量として通常0.001～100mg/m<sup>3</sup>であり、平面に適用するときは0.001～1000mg/m<sup>2</sup>である。乳剤、水和剤、フロアブル剤等は通常有効成分濃度が0.001～100000ppmとなるように水で希釀して施用し、油剤、エゾール、燐煙剤、毒餌等は通常そのまま施用する。殺虫線香、電気殺虫マット等は形態に応じて加熱により有効成分を揮散させて施用する。樹脂製剤、紙製剤、錠剤、不織布製剤、編織物製剤、シート製剤等は通常施用する空間に放置する若しくはファン等を用いて本発明の有害生物防除剤に送風して常温付近において有効成分を揮散させて施用され、その施用する空間としては、例えばクローゼット、押入れ、和ダンス、食器棚、トイレ、浴場、物置、居間、食堂、倉庫、車内等が挙げられるが、野外の開放空間で施用することもできる。

#### 【0071】

本発明の有害生物防除剤をウシ、ウマ、ブタ、ヒツジ、ヤギ、ニワトリ用の家畜、イヌ、ネコ、ラット、マウス等の小動物の外部寄生虫防除に用いる場合は、獣医学的に公知の方法で動物に使用することができる。具体的な使用方法としては、全身抑制(systemic control)を目的にする場合には、例えば錠剤、飼料混入、坐薬、注射(筋肉内、皮下、静脈内、腹腔内等)により投与され、非全身的抑制(non-systemic control)を目的とする場合には、例えば油剤若しくは水性液剤を噴霧する、ポアオン(pour-on)処理若しくはスポットオン(spot-on)処理する、シャンプー製剤で動物を洗う又は樹脂製剤を首輪や耳札にして動物に付ける等の方法により用いられる。動物体に投与する場合の本発明化合物の量は、通常動物の体重1kgに対して、0.01～1000mgの範囲である。

#### 【0072】

本発明の有害生物防除剤は他の殺虫剤、殺線虫剤、殺ダニ剤、殺菌剤、除草剤、植物生長調節剤、共力剤、肥料、土壤改良剤、動物用飼料等と混用又は併用することもできる。

#### 【0073】

かかる他の殺虫剤、殺ダニ剤の有効成分としては、例えば、アレスリン、テトラメトリン、プラレトリン、フェノトリン、レスメトリン、シフェノトリン、ペルメトリン、シペルメトリン、アルファシペルメトリン、ゼータシペルメトリン、デルタメトリン、トラロメトリン、シフルトリン、ベータシフルトリン、シハロトリン、ラムダシハロトリン、フタメトリン、イミプロトリン、エトフェンプロクス、フェンバレート、エスフェンバレーート、フェンプロパトリン、シラフルオフェン、ビフェントリン、トランスフルスリン、フルシトリネット、タウフルバリネット、アクリナトリリン、テフルトリン、シクロプロトリン、2,3,5,6-テトラフルオロ-4-(メトキシメチル)ベンジル(EZ)-(1RS,3RS;1RS,3SR)-2,2-ジメチル-3-プロピ-1-エニルシクロプロパンカルボキシレート(2,3,5,6-tetrafluoro-4-(methoxymethyl)benzyl (EZ)-(1RS,3RS;1RS,3SR)-2,2-dimethyl-3-prop-1-enylcyclopropanecarboxylate)、2,3,5,6-テトラフルオロ-4-メチルベンジル(EZ)-(1RS,3RS;1RS,3SR)-2,2-ジメチル-3-プロピ-1-エニルシクロプロパンカルボキシレート(2,3,5,6-tetrafluoro-4-methylbenzyl (EZ)-(1RS,3RS;1RS,3SR)-2,2-dimethyl-3-prop-1-enylcyclopropanecarboxylate)、ジメフルトリン、エンベンスリン等のビレスロイド化合物、ジクロルボス、フェニトロチオン、シアノホス、プロフェノホス、スルプロホス、フェントエート、イソキサチオン、テトラクロロビンホス、フェンチオン、クロルピリホス、ダイアジノン、アセフェート、テルブホス、フォレート、クロルエトキシホス、ホスチアゼート、エトプロホス、カズサホス、メチダチオン等の有機燐化合物、プロポキサー、カルバリル、メトキサジアゾン、

フェノブカルブ、メソミル、チオジカルブ、アラニカルブ、ベンフラカルブ、オキサミル、アルジカルブ、メチオカルブ等のカーバメート化合物、ルフェヌロン、クロルフルアズロン、ヘキサフルムロン、ジフルベンズロン、トリフルムロン、テフルベンズロン、フルフェノクスロン、フルアズロン、ノバルロン、トリアズロン、ビストリフルロン等のベンゾイルフェニルウレア化合物、ピリプロキシフェン、メトプレン、ハイドロプレン、フェノキシカルブ等の幼若ホルモン様物質、アセタミブリド、ニテンピラム、チアクロブリド、チアメトキサム、ジノテフラン等のネオニコチノイド系化合物、アセトプロール、エチプロール等のN-フェニルピラゾール系化合物、テブフェノジド、クロマフェノジド、メトキシフェノジド、ハロフェノジド等のベンゾイルヒドラジン化合物、ジアフェンチウロン、ピメトロジン、フロニカミド、トリアザメート、ブプロフェジン、スピノサド、エマメクチン安息香酸塩、クロルフェナピル、インドキサカルブMP、ピリダリル、シロマジン、フェンピロキシメート、テブフェンピラド、トルフェンピラド、ピリダベン、ピリミジフェン、フルアクリピリム、エトキサゾール、フェナザキン、アセキノシル、ヘキシチアゾクス、クロフェンテジン、酸化フェンブタスズ、ジコホル、プロパルギット、エバーメクチン、ミルベメクチン、アミトラズ、カルタップ、ベンスルタップ、チオシクラム、エンドスルファン、スピロジクロフェン、スピロメシフェン、アミドフルメト及びアザジラクチンがあげられる。

#### 【0074】

かかる他の殺菌剤の有効成分としては、例えば、アゾキシストロビン等のストロビルリン化合物、トリクロホスメチル等の有機リン化合物、メトコナゾール、ヘキサコナゾール、イブコナゾール、シプロコナゾール、トリフルミゾール、ペフラゾエート、ジフェノコナゾール等のアゾール化合物、IPBC等のヨードプロパルギル化合物、OIT、MEC等のイソチアゾロン化合物、フサライド、フルトラニル、バリダマイシン、プロベナゾール、ジクロメジン、ベンシクロン、ダゾメット、カスガマイシン、IBP、ピロキロン、オキソリニック酸、トリシクラゾール、フェリムゾン、メプロニル、EDDP、イソプロチオラン、カルプロパミド、ジクロシメット、フラメトピル、フルジオキソニル、プロシミドン及びジエトフェンカルブがあげられる。

#### 【実施例】

##### 【0075】

以下、本発明を製造例、製剤例および試験例によりさらに詳しく説明するが、本発明は、これらの例のみに限定されるものではない。

まず、本発明化合物の製造例を示す。

##### 【0076】

###### 製造例 1

(1) 水素化ナトリウム(60%油性)0.5gをN, N-ジメチルホルムアミド10m1に懸濁し、約0°Cで(3, 3, 3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル1.6gをN, N-ジメチルホルムアミド10m1に溶解した溶液を加えた。これを室温まで昇温してからN, N-ジメチルホルムアミドを加え、全量を20m1とした。(このようにして得られた溶液を以下溶液Aと記す。)

(2) 1-ブロモ-3-クロロプロパン0.23gをN, N-ジメチルホルムアミド1m1に溶解し、ここに溶液A 2m1を加え、室温で4時間攪拌した。その後、反応混合物に希塩酸を加え、酢酸エチルで抽出した。有機層を水、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付して、2-(3-クロロプロピル)-2-(3, 3, 3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(1)と記す。)0.13gを得た。

本発明化合物(1)

<sup>1</sup>H-NMR(CDC<sub>13</sub>, TMS) δ(ppm): 2.13~2.21(6H, m), 2.42~2.53(2H, m), 3.62(2H, t)

##### 【0077】

###### 製造例 2

1-ブロモ-3-クロロプロパンの代わりに1-ブロモ-3-クロロ-2-メチルプロパン0.17gを用い、製造例1(2)に準じて、2-(3-クロロ-2-メチルプロピル)-2-(3,3,3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(2)と記す。)0.11gを得た。

本発明化合物(2)

<sup>1</sup>H-NMR(CDC1<sub>3</sub>, TMS) δ(ppm) : 1.26(3H, d)、1.84~1.92(1H, m)、2.21~2.38(4H, m)、2.43~2.57(2H, m)、3.43~3.68(2H, m)

### 【0078】

製造例3

1-ブロモ-3-クロロプロパンの代わりに1-ブロモ-4-クロロブタン0.17gを用い、製造例1(2)に準じて、2-(4-クロロブチル)-2-(3,3,3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(3)と記す。)0.17gを得た。

本発明化合物(3)

<sup>1</sup>H-NMR(CDC1<sub>3</sub>, TMS) δ(ppm) : 1.82~1.94(4H, m)、1.96~2.06(2H, m)、2.13~2.21(2H, m)、2.41~2.53(2H, m)、2.54(2H, t)

### 【0079】

製造例4

1-ブロモ-3-クロロプロパンの代わりに2-ブロモメチル-1,1-ジクロロシクロプロパン0.21gを用い、製造例1(2)に準じて、2-(2,2-ジクロロシクロプロピルメチル)-2-(3,3,3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(4)と記す。)0.12gを得た。

本発明化合物(4)

<sup>1</sup>H-NMR(CDC1<sub>3</sub>, TMS) δ(ppm) : 1.42(1H, t)、1.81~1.96(2H, m)、2.08~2.12(1H, m)、2.22~2.29(2H, m)、2.43~2.58(3H, m)

### 【0080】

製造例5

マロノニトリル2.00gおよび1-ブロモ-3,3,3-トリフルオロプロパン13.0gをN,N-ジメチルホルムアミド10mLに溶解させ、氷浴で冷却した。ここへ炭酸カリウム8.4gをゆっくりと添加後、そのまま室温まで昇温しながら30時間攪拌した。反応液に氷水および酢酸エチルを加えて攪拌後分液し、水層を酢酸エチルで抽出した。有機層を水、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付して、2,2-ビス(3,3,3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(5)と記す。)4.75gを得た。

本発明化合物(5)

<sup>1</sup>H-NMR(CDC1<sub>3</sub>, TMS) δ(ppm) : 2.26~2.33(4H, m)、2.52~2.61(4H, m)

### 【0081】

製造例6

1-ブロモ-3-クロロプロパンの代わりにヨードエタン0.16gを用い、製造例1(2)に準じて、2-エチル-2-(3,3,3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(6)と記す。)0.03gを得た。

本発明化合物(6)

<sup>1</sup>H-NMR(CDC1<sub>3</sub>, TMS) δ(ppm) : 1.32(3H, t)、2.06(2H, q)、2.14~2.22(2H, m)、2.42~2.57(2H, m)

### 【0082】

## 製造例 7

1-ブロモ-3-クロロプロパンの代わりに1-ヨードプロパン0.17gを用い、製造例1(2)に準じて、2-プロピル-2-(3,3,3-トリフルオロプロピル)マロンニトリル(以下、本発明化合物(7)と記す。)0.05gを得た。

## 本発明化合物(7)

<sup>1</sup>H-NMR(CDC13, TMS) δ(ppm) : 1.08(3H, t)、1.68~1.77(2H, m)、1.91~1.96(2H, m)、2.13~2.21(2H, m)、2.43~2.57(2H, m)

## 【0083】

## 製造例 8

1-ブロモ-3-クロロプロパンの代わりに1-ヨードブタン0.18gを用い、製造例1(2)に準じて、2-ブチル-2-(3,3,3-トリフルオロプロピル)マロンニトリル(以下、本発明化合物(8)と記す。)0.11gを得た。

## 本発明化合物(8)

<sup>1</sup>H-NMR(CDC13, TMS) δ(ppm) : 0.98(3H, t)、1.46(2H, q)、1.63~1.72(2H, m)、1.94~2.03(2H, m)、2.18~2.23(2H, m)、2.43~2.55(2H, m)

## 【0084】

## 製造例 9

1-ブロモ-3-クロロプロパンの代わりに1-ヨードペンタン0.20gを用い、製造例1(2)に準じて、2-ペンチル-2-(3,3,3-トリフルオロプロピル)マロンニトリル(以下、本発明化合物(9)と記す。)0.10gを得た。

## 本発明化合物(9)

<sup>1</sup>H-NMR(CDC13, TMS) δ(ppm) : 0.91~1.02(3H, m)、1.38~1.45(4H, m)、1.61~1.74(2H, m)、1.93~2.07(2H, m)、2.13~2.24(2H, m)、2.47~2.54(2H, m)

## 【0085】

## 製造例 10

1-ブロモ-3-クロロプロパンの代わりに1-ヨードヘキサン0.21gを用い、製造例1(2)に準じて、2-ヘキシル-2-(3,3,3-トリフルオロプロピル)マロンニトリル(以下、本発明化合物(10)と記す。)0.13gを得た。

## 本発明化合物(10)

<sup>1</sup>H-NMR(CDC13, TMS) δ(ppm) : 0.87(3H, t)、1.28~1.43(6H, m)、1.63~1.72(2H, m)、1.91~2.01(2H, m)、2.13~2.19(2H, m)、2.42~2.51(2H, m)

## 【0086】

## 製造例 11

1-ブロモ-3-クロロプロパンの代わりに1-ヨードヘプタン0.23gを用い、製造例1(2)に準じて、2-ヘプチル-2-(3,3,3-トリフルオロプロピル)マロンニトリル(以下、本発明化合物(11)と記す。)0.10gを得た。

## 本発明化合物(11)

<sup>1</sup>H-NMR(CDC13, TMS) δ(ppm) : 0.90(3H, t)、2.21~2.42(8H, m)、2.59~2.68(2H, m)、1.91~2.02(2H, m)、2.12~2.28(2H, m)、2.41~2.53(2H, m)

## 【0087】

## 製造例 12

1-ブロモ-3-クロロプロパンの代わりに1-ヨードオクタン0.24gを用い、製造例1(2)に準じて、2-オクチル-2-(3,3,3-トリフルオロプロピル)マロンニトリル(以下、本発明化合物(12)と記す。)0.17gを得た。

## 本発明化合物(12)

<sup>1</sup>H-NMR (CDC1<sub>3</sub>, TMS) δ (ppm) : 0.89 (3H, t)、1.21~1.42 (10H, m)、1.63~1.71 (2H, m)、1.92~1.97 (2H, m)、2.13~2.19 (2H, m)、2.41~2.58 (2H, m)

### 【0088】

#### 製造例13

1-ブロモ-3-クロロプロパンの代わりに1-ブロモノナン0.21gを用い、製造例1(2)に準じて、2-ノニル-2-(3,3,3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(13)と記す。)0.19gを得た。

#### 本発明化合物(13)

<sup>1</sup>H-NMR (CDC1<sub>3</sub>, TMS) δ (ppm) : 0.89 (3H, t)、1.21~1.48 (12H, m)、1.68~1.77 (2H, m)、1.96~2.03 (2H, m)、2.19~2.23 (2H, m)、2.43~2.61 (2H, m)

### 【0089】

#### 製造例14

1-ブロモ-3-クロロプロパンの代わりに1-ブロモデカン0.22gを用い、製造例1(2)に準じて、2-デシル-2-(3,3,3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(14)と記す。)0.15gを得た。

#### 本発明化合物(14)

<sup>1</sup>H-NMR (CDC1<sub>3</sub>, TMS) δ (ppm) : 0.89 (3H, t)、1.22~1.48 (14H, m)、1.68~1.74 (2H, m)、1.97~2.01 (2H, m)、2.18~2.22 (2H, m)、2.48~2.63 (2H, m)

### 【0090】

#### 製造例15

1-ブロモ-3-クロロプロパンの代わりにアリルブロマイド0.12gを用い、製造例1(2)に準じて、2-アリル-2-(3,3,3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(15)と記す。)0.12gを得た。

#### 本発明化合物(15)

<sup>1</sup>H-NMR (CDC1<sub>3</sub>, TMS) δ (ppm) : 2.12~2.21 (2H, m)、2.43~2.58 (2H, m)、2.75 (2H, d)、5.43~5.51 (2H, m)、5.84~5.95 (1H, m)

### 【0091】

#### 製造例16

1-ブロモ-3-クロロプロパンの代わりに1-ブロモ-3-ブテン0.14gを用い、製造例1(2)に準じて、2-(3-ブテニル)-2-(3,3,3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(16)と記す。)0.13gを得た。

#### 本発明化合物(16)

<sup>1</sup>H-NMR (CDC1<sub>3</sub>, TMS) δ (ppm) : 2.06~2.10 (2H, m)、2.21~2.24 (2H, m)、2.45~2.58 (4H, m)、5.14~5.23 (2H, m)、5.81~5.85 (1H, m)

### 【0092】

#### 製造例17

1-ブロモ-3-クロロプロパンの代わりに1-ブロモ-3,4,4-トリフルオロー-3-ブテン0.19gを用い、製造例1(2)に準じて、2-(3,3,4-トリフルオロー-3-ブテニル)-2-(3,3,3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(17)と記す。)0.19gを得た。

#### 本発明化合物(17)

<sup>1</sup>H-NMR (CDC1<sub>3</sub>, TMS) δ (ppm) : 2.23~2.27 (4H, m)、2.52~2.61 (2H, m)、2.69~2.80 (2H, m)

### 【0093】

#### 製造例18

ジメチルスルホキシド5m1に2-(3, 3, 3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル0.4g及びシクロプロピルメチルブロマイド0.5gを溶解し、炭酸カリウム0.41gを加えて室温で5時間攪拌した。その後、反応混合物に希塩酸を加え、酢酸エチルで抽出した。有機層を水、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付して、2-シクロプロピルメチル-2-(3, 3, 3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(18)と記す。)0.34gを得た。

本発明化合物(18)

<sup>1</sup>H-NMR(CDC1<sub>3</sub>, TMS) δ(ppm) : 0.40(2H, dd)、0.72(2H, dd)、0.91~0.98(1H, m)、1.95(2H, d) 2.16~2.23(2H, m)、2.43~2.52(2H, m)

#### 【0094】

製造例19

シクロプロピルメチルブロマイドの代わりにシクロブチルメチルブロマイド0.44gを用い、製造例18に準じて、2-シクロブチルメチル-2-(3, 3, 3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(19)と記す。)0.34gを得た。

本発明化合物(19)

<sup>1</sup>H-NMR(CDC1<sub>3</sub>, TMS) δ(ppm) : 1.81~1.92(2H, m)、1.93~2.01(2H, m)、2.06(2H, d)、2.11~2.19(2H, m)、2.22~2.27(2H, m)、2.41~2.52(2H, m)、2.61~2.69(1H, m)

#### 【0095】

製造例20

シクロプロピルメチルブロマイドの代わりに2, 2, 3, 3-テトラフルオロプロピルトリフルオロメタンスルホン酸エステル0.44gを用い、製造例18に準じて、2-(2, 2, 3, 3-テトラフルオロプロピル)-2-(3, 3, 3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(20)と記す。)0.34gを得た。

本発明化合物(20)

<sup>1</sup>H-NMR(CDC1<sub>3</sub>, TMS) δ(ppm) : 2.34~2.41(2H, m)、2.55~2.63(2H, m)、2.74(2H, t)、5.88(1H, tt)

#### 【0096】

製造例21

シクロプロピルメチルブロマイドの代わりに(2, 2, 2-トリフルオロエチル)トリフルオロメタンスルホン酸エステル1.2gを用い、製造例18に準じて、2-(2, 2, 2-トリフルオロエチル)-2-(3, 3, 3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(21)と記す。)0.2gを得た。

本発明化合物(21)

<sup>1</sup>H-NMR(CDC1<sub>3</sub>, TMS) δ(ppm) : 2.30~2.38(2H, m)、2.51~2.69(2H, m)、2.87(2H, q)

#### 【0097】

製造例22

シクロプロピルメチルブロマイドの代わりに(2, 2, 3, 3, 3-ペンタフルオロプロピル)トリフルオロメタンスルホン酸エステル1.3gを用い、製造例18に準じて、2-(2, 2, 3, 3, 3-ペンタフルオロプロピル)-2-(3, 3, 3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(22)と記す。)0.2gを得た。

本発明化合物(22)

<sup>1</sup>H-NMR(CDC1<sub>3</sub>, TMS) δ(ppm) : 2.35~2.41(2H, m)、2.57~2.67(2H, m)、2.81(2H, t)

#### 【0098】

## 製造例 2 3

シクロプロピルメチルブロマイドの代わりに (2, 2, 3, 4, 4, 4-ヘキサフルオロブチル) トリフルオロメタンスルホン酸エステル 2.4 g を用い、製造例 18 に準じて、2-(2, 2, 3, 4, 4, 4-ヘキサフルオロブチル)-2-(3, 3, 3-トリフルオロプロピル) マロノニトリル（以下、本発明化合物（23）と記す。）0.34 g を得た。

## 本発明化合物（23）

<sup>1</sup>H-NMR (CDCl<sub>3</sub>, TMS) δ (ppm) : 2.36~2.40 (2H, m)、2.57~2.68 (2H, m)、2.81~2.91 (2H, m)、4.85~5.03 (1H, m)

## 【0099】

## 製造例 2 4

シクロプロピルメチルブロマイドの代わりに (2, 2, 3, 3, 4, 4, 4-ヘプタフルオロブチル) トリフルオロメタンスルホン酸エステル 1.5 g を用い、製造例 18 に準じて、2-(2, 2, 3, 3, 4, 4, 4-ヘプタフルオロブチル)-2-(3, 3, 3-トリフルオロプロピル) マロノニトリル（以下、本発明化合物（24）と記す。）2.0 g を得た。

## 本発明化合物（24）

<sup>1</sup>H-NMR (CDCl<sub>3</sub>, TMS) δ (ppm) : 2.37~2.41 (2H, m)、2.58~2.80 (2H, m)、2.86 (2H, t)

## 【0100】

## 製造例 2 5

シクロプロピルメチルブロマイドの代わりに (2-フルオロエチル) トルエンスルホン酸エステル 2.2 g を用い、製造例 18 に準じて、2-(2-フルオロエチル)-2-(3, 3, 3-トリフルオロプロピル) マロノニトリル（以下、本発明化合物（25）と記す。）0.4 g を得た。

## 本発明化合物（25）

<sup>1</sup>H-NMR (CDCl<sub>3</sub>, TMS) δ (ppm) : 2.29~2.34 (2H, m)、2.40~2.42 (2H, m)、2.46~2.59 (2H, m)、4.82 (2H, dt)

## 【0101】

## 製造例 2 6

シクロプロピルメチルブロマイドの代わりに 1H、1H、2H、2H-パーフルオロオクチルヨージド 4.7 g を用い、製造例 18 に準じて、2-(1H、1H、2H、2H-パーフルオロオクチル)-2-(3, 3, 3-トリフルオロプロピル) マロノニトリル（以下、本発明化合物（26）と記す。）0.6 g を得た。

## 本発明化合物（26）

<sup>1</sup>H-NMR (CDCl<sub>3</sub>, TMS) δ (ppm) : 2.27~2.35 (4H, m)、2.47~2.61 (4H, m)

## 【0102】

## 製造例 2 7

シクロプロピルメチルブロマイドの代わりに 3-ブロモ-1-プロピン 1.2 g を用い、製造例 18 に準じて、2-(3, 3, 3-トリフルオロプロピル)-2-(2-プロピニル) マロノニトリル（以下、本発明化合物（27）と記す。）0.94 g を得た。

## 本発明化合物（27）

<sup>1</sup>H-NMR (CDCl<sub>3</sub>, TMS) δ (ppm) : 2.34~2.39 (2H, m)、2.44~2.57 (3H, m)、3.00 (2H, s)

## 【0103】

## 製造例 2 8

シクロプロピルメチルブロマイドの代わりに (ブロモメチル) シクロヘキサン 1.8 g を用い、製造例 18 に準じて、2-シクロヘキシルメチル-2-(3, 3, 3-トリフル

オロプロピル) マロノニトリル (以下、本発明化合物 (28) と記す。) 0.64 g を得た。

本発明化合物 (28)

<sup>1</sup>H-NMR (CDCl<sub>3</sub>, TMS) δ (ppm) : 1.14~1.71 (5H, m)、1.80~1.98 (4H, m)、2.06~2.11 (2H, m)、2.21~2.28 (2H, m)

【0104】

製造例 29

シクロプロピルメチルブロマイドの代わりに 3、3、4、4、4-ペンタフルオロプロピルヨージド 2.8 g を用い、製造例 18 に準じて、2-(3、3、4、4、4-ペンタフルオロプロピル)-2-(3,3,3-トリフルオロプロピル) マロノニトリル (以下、本発明化合物 (29) と記す。) 1.8 g を得た。

本発明化合物 (29)

<sup>1</sup>H-NMR (CDCl<sub>3</sub>, TMS) δ (ppm) : 2.12~2.20 (4H, m)、2.23~2.59 (4H, m)

【0105】

製造例 30

シクロプロピルメチルブロマイドの代わりに 1-ブロモ-2-クロロ-4-ヨード-1、1、2-トリフルオロブタン 2.8 g を用い、製造例 18 に準じて、2-(4-ブロモ-3-クロロ-3、4、4-トリフルオロプロピル)-2-(3,3,3-トリフルオロプロピル) マロノニトリル (以下、本発明化合物 (30) と記す。) 0.89 g を得た。

本発明化合物 (30)

<sup>1</sup>H-NMR (CDCl<sub>3</sub>, TMS) δ (ppm) : 2.30~2.65 (7H, m)、2.74~2.83 (1H, m)

【0106】

製造例 31

シクロプロピルメチルブロマイドの代わりに (2,2,3,3,4,4,5,5-オクタフルオロペンチル) トリフルオロメタンスルホン酸エステル 1.6 g を用い、製造例 18 に準じて、2-(2,2,3,3,4,4,5,5-オクタフルオロペンチル)-2-(3,3,3-トリフルオロプロピル) マロノニトリル (以下、本発明化合物 (31) と記す。) 0.54 g を得た。

本発明化合物 (31)

<sup>1</sup>H-NMR (CDCl<sub>3</sub>, TMS) δ (ppm) : 2.36~2.41 (2H, m) 2.57~2.65 (2H, m)、2.84 (2H, t)、6.07 (1H, tt)

エチレングリコールジメチルエーテル 10 mL に 2-(2,2,3,3,4,4,5,5-オクタフルオロペンチル) マロノニトリル 1.4 g 及び 1-ブロモ-3,3,3-トリフルオロプロパン 1.2 g を溶解し、炭酸カリウム 0.97 g を加え、室温で 10 時間攪拌した。その後、反応混合物に希塩酸を加え、メチル tert-ブチルエーテルで抽出した。有機層を水、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、本発明化合物 (31) 0.74 g を得た。

【0107】

製造例 32

シクロプロピルメチルブロマイドの代わりに (2,2,3,3,4,4,5,5,6,6,7,7-ドデカフルオロヘプチル) トリフルオロメタンスルホン酸エステル 1.6 g を用い、製造例 18 に準じて、2-(2,2,3,3,4,4,5,5,6,6,7,7-ドデカフルオロヘプチル)-2-(3,3,3-トリフルオロプロピル) マロノニトリル (以下、本発明化合物 (32) と記す。) 0.70 g を得た。

本発明化合物 (32)

<sup>1</sup>H-NMR (CDCl<sub>3</sub>, TMS) δ (ppm) : 2.36~2.41 (2H, m)、2

. 5.8~2.65 (2H, m)、2.84 (2H, t)、6.06 (1H, tt)

【0108】

製造例33

シクロプロピルメチルブロマイドの代わりに2-(パーフルオロデシル)エチルヨージド3.2gを用い、製造例18に準じて、2-((2-パーフルオロデシル)エチル)-2-(3,3,3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(33))と記す。) 2.0gを得た。

本発明化合物(33)

<sup>1</sup>H-NMR(CDC13, TMS) δ (ppm) : 2.66~2.80 (4H, m)、3.23~3.29 (4H, m)

【0109】

製造例34

シクロプロピルメチルブロマイドの代わりに2-(パーフルオロオクチル)エチルヨージド2.4gを用い、製造例18に準じて、2-((2-パーフルオロオクチル)エチル)-2-(3,3,3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(34))と記す。) 0.1gを得た。

本発明化合物(34)

<sup>1</sup>H-NMR(CDC13, TMS) δ (ppm) : 2.27~2.35 (4H, m)、2.45~2.58 (4H, m)

【0110】

製造例35

シクロプロピルメチルブロマイドの代わりに1-ブロモ-4-ヨード-1,1,2,2-テトラフルオロブタン1.7gを用い、製造例18に準じて、2-(4-ブロモ-3,3,4,4-テトラフルオロブチル)-2-(3,3,3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(35))と記す。) 0.53gを得た。

本発明化合物(35)

<sup>1</sup>H-NMR(CDC13, TMS) δ (ppm) : 2.26~2.36 (4H, m)、2.47~2.61 (4H, m)

【0111】

製造例36

シクロプロピルメチルブロマイドの代わりに4-ヨード-1,1,1,2-テトラフルオロ-2-(トリフルオロメチル)ブタン1.7gを用い、製造例18に準じて、2-((2,4,4,4-テトラフルオロ-3-(トリフルオロメチル)ブチル)-2-(3,3,3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(36))と記す。) 0.53gを得た。

本発明化合物(36)

<sup>1</sup>H-NMR(CDC13, TMS) δ (ppm) : 2.23~2.32 (4H, m)、2.47~2.61 (4H, m)

【0112】

製造例37

シクロプロピルメチルブロマイドの代わりに5-ヨード-1,1,1,2,2,3,3-ヘプタフルオロペンタン1.6gを用い、製造例18に準じて、2-(3,3,4,4,5,5,5-ヘプタフルオロペンチル)-2-(3,3,3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(37))と記す。) 0.23gを得た。

本発明化合物(37)

<sup>1</sup>H-NMR(CDC13, TMS) δ (ppm) : 2.28~2.35 (4H, m)、2.48~2.61 (4H, m)

【0113】

製造例38

シクロプロピルメチルブロマイドの代わりに1H、1H、2H、2H-パーフルオロヘ

キシルヨージド 2. 1 g を用い、 製造例 18 に準じて、 2-(3, 3, 4, 4, 5, 5, 6, 6-ノナフルオロヘキシル)-2-(3, 3, 3-トリフルオロプロピル) マロノニトリル（以下、本発明化合物（38）と記す。）0. 64 gを得た。

本発明化合物（38）

<sup>1</sup>H-NMR (CDCl<sub>3</sub>, TMS) δ (ppm) : 2. 26~2. 35 (4H, m)、2. 50~2. 62 (4H, m)

#### 【0114】

製造例 39

シクロプロピルメチルブロマイドの代わりに3-フルオロプロピルブロマイド 1. 4 g を用い、 製造例 18 に準じて、 2-(3-フルオロプロピル)-2-(3, 3, 3-トリフルオロプロピル) マロノニトリル

（以下、本発明化合物（39）と記す。）0. 62 gを得た。

本発明化合物（39）

<sup>1</sup>H-NMR (CDCl<sub>3</sub>, TMS) δ (ppm) : 2. 05~2. 11 (2H, m)、2. 13~2. 19 (2H, m)、2. 20~2. 28 (2H, m)、3. 49~2. 59 (2H, m)、4. 57 (2H, dt)

#### 【0115】

製造例 40

シクロプロピルメチルブロマイドの代わりに1, 2-ジブロモエタン 5. 6 g を用い、 製造例 18 に準じて、 2-(2-ブロモエチル)-2-(3, 3, 3-トリフルオロプロピル) マロノニトリル（以下、本発明化合物（40）と記す。）2. 3 gを得た。

本発明化合物（40）

<sup>1</sup>H-NMR (CDCl<sub>3</sub>, TMS) δ (ppm) : 2. 23~2. 30 (2H, m)、2. 49~2. 58 (4H, m)、3. 59 (2H, t)

#### 【0116】

製造例 41

シクロプロピルメチルブロマイドの代わりに1, 3-ジブロモプロパン 5. 6 g を用い、 製造例 18 に準じて、 2-(3-ブロモプロピル)-2-(3, 3, 3-トリフルオロプロピル) マロノニトリル（以下、本発明化合物（41）と記す。）2. 3 gを得た。

本発明化合物（41）

<sup>1</sup>H-NMR (CDCl<sub>3</sub>, TMS) δ (ppm) : 2. 16~2. 30 (6H, m)、2. 47~2. 59 (2H, m)、3. 51 (2H, t)

#### 【0117】

製造例 42

シクロプロピルメチルブロマイドの代わりに5-ブロモ-1-ペンテン 7. 2 g を用い、 製造例 18 に準じて、 2-(4-ペンテニル)-2-(3, 3, 3-トリフルオロプロピル) マロノニトリル（以下、本発明化合物（42）と記す。）6. 0 gを得た。

本発明化合物（42）

<sup>1</sup>H-NMR (CDCl<sub>3</sub>, TMS) δ (ppm) : 1. 78~1. 85 (2H, m)、1. 97~2. 01 (2H, m)、2. 18~2. 23 (4H, m)、2. 46~2. 57 (2H, m)、5. 06~5. 12 (2H, m)、5. 72~5. 82 (1H, m)

#### 【0118】

製造例 43

2-(2, 2-ジメチルプロピル) マロノニトリル 400 mg を N, N-ジメチルホルムアミド 5 ml に溶解させ、氷浴で冷却した。ここへ水素化ナトリウム（60%油性）1 20 mg をゆっくりと添加した。水素ガスの発生がおさまった後、1-ブロモ-3, 3, 3-トリフルオロプロパン 750 mg をゆっくりと滴下し、そのまま室温まで昇温しながら 12 時間攪拌した。反応液に氷水および酢酸エチルを加えて攪拌後分液し、水層を酢酸エチルで抽出した。有機層を水、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付して、2-

2, 2-ジメチルプロピル) -2-(3, 3, 3-トリフルオロプロピル) マロノニトリル(以下、本発明化合物(43)と記す。) 4.37mgを得た。

#### 本発明化合物(43)

<sup>1</sup>H-NMR(CDC1<sub>3</sub>, TMS) δ(ppm): 1.21(9H, s)、1.92(2H, s)、2.19~2.23(2H, m)、2.49~2.61(2H, m)

#### 【0119】

#### 製造例44

1-ブロモ-3-クロロプロパンの代わりに3-ブロモ-2-メチルプロペーン0.12gを用い、製造例1(2)に準じて、2-(2-メチル-2-ブロペニル)-2-(3,3,3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(44)と記す。)0.20gを得た。

#### 本発明化合物(44)

<sup>1</sup>H-NMR(CDC1<sub>3</sub>, TMS) δ(ppm): 1.97(3H, s)、2.19~2.24(2H, m)、2.48~2.60(2H, m)、2.71(2H, s)、5.16(2H, d)

#### 【0120】

#### 製造例45

1-ブロモ-3-クロロプロパンの代わりに1-ブロモ-2-メチルプロパン0.14gを用い、製造例1(2)に準じて、2-(2-メチルプロピル)-2-(3,3,3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(45)と記す。)0.16gを得た。

#### 本発明化合物(45)

<sup>1</sup>H-NMR(CDC1<sub>3</sub>, TMS) δ(ppm): 1.17(6H, d)、1.89(2H, d)、2.08~2.18(1H, m)、2.19~2.23(2H, m)、2.47~2.62(2H, m)

#### 【0121】

#### 製造例46

ジメチルスルホキシド10mlに2-(2,2,3,4,4,4-ヘキサフルオロブチル)マロノニトリル1.2g及び2-クロロ-1,4-ジブロモ-1,1,2-トリフルオロブタン1.5gを溶解し、炭酸カリウム0.7gを加えて室温で5時間攪拌した。その後、反応混合物に希塩酸を加え、酢酸エチルで抽出した。有機層を水、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付して、2-(4-ブロモ-3-クロロ-3,4,4-トリフルオロブチル)-2-(2,2,3,4,4,4-ヘキサフルオロブチル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(46)と記す。)0.14gを得た。

#### 本発明化合物(46)

<sup>1</sup>H-NMR(CDC1<sub>3</sub>, TMS) δ(ppm): 2.39~2.93(6H, m)、4.86~5.02(1H, m)

#### 【0122】

#### 製造例47

ジメチルスルホキシド5mlに2-(2,2,3,3,4,4,5,5-オクタフルオロペンチル)マロノニトリル0.56g及びアリルブロマイド0.30gを溶解し、炭酸カリウム0.28gを加えて室温で5時間攪拌した。その後、反応混合物に希塩酸を加え、酢酸エチルで抽出した。有機層を水、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付して、2-(アリル)-2-(2,2,3,3,4,4,5,5-オクタフルオロペンチル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(47)と記す。)0.15gを得た。

#### 本発明化合物(47)

<sup>1</sup>H-NMR(CDC1<sub>3</sub>, TMS) δ(ppm): 2.75(2H, t)、2.87(2H, d)、5.47~5.72(2H, m)、5.86~6.21(2H, m)

## 【0123】

## 製造例 48

シクロプロピルメチルブロマイドの代わりに 1-ヨード-4, 4, 4-トリフルオロブタン 1.2 g を用い、製造例 18 に準じて、2-(4, 4, 4-トリフルオロブチル)-2-(3, 3, 3-トリフルオロプロピル) マロノニトリル（以下、本発明化合物（48）と記す。）1.0 g を得た。

## 本発明化合物（48）

<sup>1</sup>H-NMR (CDCl<sub>3</sub>, TMS) δ (ppm) : 2.00~2.11 (4H, m), 2.21~2.32 (4H, m), 2.48~2.59 (2H, m)

## 【0124】

## 製造例 49

ジメチルスルホキシド 30mL に (2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5-オクタフルオロベンチル) トリフルオロメタンスルホン酸エステル 14.6 g を溶解し、炭酸カリウム 5.5 g を加えた。さらに、ジメチルスルホキシド 10mL に溶解したマロノニトリル 2.6 g をゆっくりと滴下し、室温で 3 時間攪拌した。さらに (2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5-オクタフルオロベンチル) トリフルオロメタンスルホン酸エステル 7.0 g、炭酸カリウム 2.7 g を加え、1 時間攪拌した。その後、反応混合物に希塩酸を加え、酢酸エチルで抽出した。有機層を水、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付した。得られた留分を濃縮、クロロホルムで洗浄し、2, 2-ビス (2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5-オクタフルオロベンチル) マロノニトリル（以下、本発明化合物（49）と記す。）0.13 g を得た。

## 本発明化合物（49）

<sup>1</sup>H-NMR (CDCl<sub>3</sub>, TMS) δ (ppm) : 3.00 (4H, t), 6.07 (2H, tt)

## 【0125】

## 製造例 50

N, N-ジメチルホルムアミド 50mL にマロノニトリル 7.5 g を溶解し、炭酸カリウム 10.4 g を加えた。室温で 1 時間攪拌し、N, N-ジメチルホルムアミド 20mL に溶解した (2, 2, 3, 3-テトラフルオロプロピル) トリフルオロメタンスルホン酸エステル 10.0 g をゆっくりと滴下し、一晩攪拌した。その後、反応混合物を水に注加し、ジエチルエーテルで抽出した。有機層を水、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付した。得られた留分をクロロホルムで洗浄し、2, 2-ビス (2, 2, 3, 3-テトラフルオロプロピル) マロノニトリル（以下、本発明化合物（50）と記す。）0.08 g を得た。

## 本発明化合物（50）

<sup>1</sup>H-NMR (CDCl<sub>3</sub>, TMS) δ (ppm) : 2.89 (4H, t), 5.88 (2H, tt)

## 【0126】

## 製造例 51

ジメチルスルホキシド 10mL に 2-(2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5-オクタフルオロベンチル) マロノニトリル 1.4 g 及びヨードペンタン 1.0 g を溶解し、炭酸カリウム 0.70 g を加えて室温で 3 時間攪拌した。その後、反応混合物に希塩酸を加え、酢酸エチルで抽出した。有機層を水、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付して、2-(2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5-オクタフルオロベンチル)-2-ペンチルマロノニトリル（以下、本発明化合物（51）と記す。）0.90 g を得た。

## 本発明化合物（51）

<sup>1</sup>H-NMR (CDCl<sub>3</sub>, TMS) δ (ppm) : 0.94 (3H, t), 1.37~1

. 45 (4 H, m)、1. 71~1. 79 (2 H, m)、2. 07~2. 11 (2 H, m)  
）、2. 76 (2 H, t)、6. 06 (1 H, t t)

## 【0127】

## 製造例 5 2

ジメチルスルホキシド 4.0 m l に 2-(3, 3, 3-トリフルオロプロピル) マロノニトリル 3. 2 g、ジブロモメタン 7. 0 g、炭酸カリウム 5. 5 g を加え、室温で 18 時間攪拌した。その後、反応混合物を水に注加し、ジエチルエーテルで抽出した。有機層を水、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、2-ブロモメチル-2-(3, 3, 3-トリフルオロプロピル) マロノニトリル（以下、本発明化合物（52）と記す。）3. 4 gを得た。

## 本発明化合物（52）

<sup>1</sup>H-NMR (CDCl<sub>3</sub>, TMS) δ (ppm) : 2. 32~2. 38 (2 H, m)、2. 50~2. 59 (2 H, m)、3. 72 (2 H, s)

## 【0128】

## 製造例 5 3

N, N-ジメチルホルムアミド 1.0 m l に 2-(3, 3, 3-トリフルオロプロピル) マロノニトリル 2. 0 g 及び (2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5, 5-ノナフルオロペンチル) トリフルオロメタンスルホン酸エステル 4. 7 g を溶解し、炭酸カリウム 2. 0 g を加え、60℃で 4 時間攪拌した。その後、反応混合物に希塩酸を加え、メチルtert-ブチルエーテルで抽出した。有機層を水、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、2-(2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5, 5-ノナフルオロペンチル)-2-(3, 3, 3-トリフルオロプロピル) マロノニトリル（以下、本発明化合物（53）と記す。）0. 87 gを得た。

## 本発明化合物（53）

<sup>1</sup>H-NMR (CDCl<sub>3</sub>, TMS) δ (ppm) : 2. 36~2. 41 (2 H, m)、2. 56~2. 67 (2 H, m)、2. 84 (2 H, t)

## 【0129】

## 製造例 5 4

ジメチルスルホキシド 5 m l に 2-(3, 3, 3-トリフルオロプロピル) マロノニトリル 1. 6 g 及び 1, 2-ジクロロ-4-ヨード-1, 1, 2-トリフルオロブタン 3. 1 g を溶解し、炭酸カリウム 1. 4 g を、室温で 6 時間攪拌した。その後、反応混合物に希塩酸を加え、メチルtert-ブチルエーテルで抽出した。有機層を水、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、2-(3, 4-ジクロロ-3, 4, 4-トリフルオロブチル)-2-(3, 3, 3-トリフルオロプロピル) マロノニトリル（以下、本発明化合物（54）と記す。）1. 9 gを得た。

## 本発明化合物（54）

<sup>1</sup>H-NMR (CDCl<sub>3</sub>, TMS) δ (ppm) : 2. 28~2. 61 (7 H, m)、2. 71~2. 80 (1 H, m)

## 【0130】

## 製造例 5 5

クロロホルム 5 m l にジエチルアミノサルファトリフルオリド 0. 29 g を溶解させ、0℃に冷却した。クロロホルム 3 m l に溶解させた 2-(5-ヒドロキシペンチル)-2-(3, 3, 3-トリフルオロプロピル) マロノニトリル 0. 40 g をゆっくりと滴下し、室温に戻し 9 時間攪拌した。その後、反応混合物を水に加え、メチルtert-ブチルエーテルで抽出した。有機層を水、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、2-(5-フルオロペンチル)-2-(3, 3, 3-トリフル

オロプロピル) マロノニトリル（以下、本発明化合物（55）と記す。）0.12 gを得た。

#### 本発明化合物（55）

<sup>1</sup>H-NMR (CDCl<sub>3</sub>, TMS) δ (ppm) : 1.54~1.61 (2H, m)、1.70~1.84 (4H, m)、1.99~2.03 (2H, m)、2.19~2.23 (2H, m)、2.46~2.58 (2H, m)、4.48 (2H, dt)

#### 【0131】

#### 製造例56

エチレンジリコールジメチルエーテル10m1にマロノニトリル0.66 g及び1-ヨード-3,4,4,4-テトラフルオロー-3-トリフルオロメチルブタン9.7 gを溶解し、炭酸カリウム4.1 gを加え、室温で15時間攪拌した。その後、反応混合物に希塩酸を加え、メチルtert-ブチルエーテルで抽出した。有機層を水、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、2,2-ビス(3,4,4,4-テトラフルオロー-3-トリフルオロメチルブチル)マロノニトリル（以下、本発明化合物（56）と記す。）0.04 gを得た。

#### 本発明化合物（56）

<sup>1</sup>H-NMR (CDCl<sub>3</sub>, TMS) δ (ppm) : 2.27~2.31 (4H, m)、2.47~2.57 (4H, m)

#### 【0132】

#### 製造例57

2-(2,2,3,3,4,4,5,5-オクタフルオロペンチル)マロノニトリル1.4 gをテトラブチルアンモニウムフルオリドのテトラヒドロフラン溶液(1モル/L)6m1に溶解させ、0℃に冷却した。テトラヒドロフラン3m1に溶解した2-ブロモ-3,3,3-トリフルオロプロパン1.1 gを滴下し、ゆっくりと室温に戻し8時間攪拌し、さらに60℃で5時間攪拌した。その後、反応混合物に希塩酸を加え、メチルtert-ブチルエーテルで抽出した。有機層を水、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、2-(2,2,3,3,4,4,5,5-オクタフルオロペンチル)-2-(2-ブロモ-3,3,3-トリフルオロプロパン)マロノニトリル（以下、本発明化合物（57）と記す。）0.02 gを得た。

#### 本発明化合物（57）

<sup>1</sup>H-NMR (CDCl<sub>3</sub>, TMS) δ (ppm) : 2.71~2.98 (4H, m)、4.33~4.46 (1H, m)、6.03 (1H, tt)

#### 【0133】

#### 製造例58

2-(3,3,3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル1.6 gをテトラブチルアンモニウムフルオリドのテトラヒドロフラン溶液(1モル/L)20m1に溶解させ、0℃に冷却した。2-クロロ-3,3,3-トリフルオロプロパン5m1を加え、ゆっくりと室温に戻し3時間攪拌した。その後、反応混合物に希塩酸を加え、メチルtert-ブチルエーテルで抽出した。有機層を水、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、2-(2-クロロ-3,3,3-トリフルオロプロピル)-2-(3,3,3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル（以下、本発明化合物（58）と記す。）0.22 gを得た。

#### 本発明化合物（58）

<sup>1</sup>H-NMR (CDCl<sub>3</sub>, TMS) δ (ppm) : 2.31~2.40 (2H, m)、2.54~2.66 (4H, m)、4.47~4.52 (1H, m)

#### 【0134】

#### 製造例59

0 ℃に冷却したジエチルアミノサルファトリフルオリド2m1に2-(2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5-オクタフルオロベンチル)-2-(3-オキソブチル)マロノニトリル0.15gを徐々に加え、室温に戻し8時間攪拌した。その後、反応混合物を水に加え、メチルtert-ブチルエーテルで抽出した。有機層を水、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、2-(3, 3-ジフルオロブチル)-2-(2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5-オクタフルオロベンチル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(59)と記す。)0.12gを得た。

#### 本発明化合物(59)

<sup>1</sup>H-NMR(CDC13, TMS) δ(ppm): 1.72(3H, t), 2.21~2.36(4H, m), 2.80(2H, t), 6.03(1H, tt)

#### 【0135】

#### 製造例60

クロロホルム3m1にジエチルアミノサルファトリフルオリド1.1gを溶解させ、0℃に冷却した。クロロホルム3m1に溶解させた2-(5-オキソベンチル)-2-(3, 3, 3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル0.80gをゆっくりと滴下し、室温に戻し7時間攪拌した。その後、反応混合物を水に加え、メチルtert-ブチルエーテルで抽出した。有機層を水、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、2-(5, 5-ジフルオロベンチル)-2-(3, 3, 3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(60)と記す。)0.45gを得た。

#### 本発明化合物(60)

<sup>1</sup>H-NMR(CDC13, TMS) δ(ppm): 1.58~1.66(2H, m), 1.75~1.83(2H, m), 1.85~1.98(2H, m), 1.99~2.04(2H, m), 2.19~2.23(2H, m), 2.46~2.58(2H, m), 5.85(1H, tt)

#### 【0136】

#### 製造例61

エチレングリコールジメチルエーテル10m1に2-(2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5-オクタフルオロベンチル)マロノニトリル1.4g及び(2, 2, 3, 3-テトラフルオロプロピル)トリフルオロメタンスルホン酸エステル4.0gを溶解し、炭酸カリウム1.4gを加え、室温で8時間攪拌した。その後、反応混合物に希塩酸を加え、メチルtert-ブチルエーテルで抽出した。有機層を水、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、2-(2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5-オクタフルオロベンチル)-2-(2, 2, 3, 3-テトラフルオロプロピル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(61)と記す。)0.36gを得た。

#### 本発明化合物(61)

<sup>1</sup>H-NMR(CDC13, TMS) δ(ppm): 2.91(2H, t), 2.99(2H, t), 5.89(1H, tt), 6.06(1H, tt)

#### 【0137】

#### 製造例62

ジメチルスルホキシド10m1に2-(2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5-オクタフルオロベンチル)マロノニトリル1.4g及び1, 3-ジブロモブタン2.2gを溶解し、炭酸カリウム0.83gを加え、室温で4時間攪拌した。その後、反応混合物に希塩酸を加え、メチルtert-ブチルエーテルで抽出した。有機層を水、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、2-(3-ブロモブチル)-2-(2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5-オクタフルオロベンチル)マロノニトリル(以

下、本発明化合物（62）と記す。）1.2gを得た。

本発明化合物（62）

<sup>1</sup>H-NMR(CDC1<sub>3</sub>, TMS) δ(ppm): 1.81(3H, d)、2.14~2.47(4H, m)、2.83(2H, t)、4.13~4.18(1H, m)、6.07(1H, tt)

【0138】

製造例63

ジメチルスルホキシド20m1に2-(3,3,3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル3.3g及び1,4-ジブロモブタン8.6gを溶解し、炭酸カリウム3.0gを加え、室温で2時間攪拌した。その後、反応混合物に希塩酸を加え、メチルtert-ブチルエーテルで抽出した。有機層を水、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、2-(4-ブロモブチル)-2-(3,3,3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル（以下、本発明化合物（63）と記す。）3.2gを得た。

本発明化合物（63）

<sup>1</sup>H-NMR(CDC1<sub>3</sub>, TMS) δ(ppm): 1.85~1.93(2H, m)、1.95~2.04(4H, m)、2.18~2.23(2H, m)、2.42~2.55(2H, m)、3.41(2H, t)

【0139】

製造例64

0℃に冷却したジエチルアミノサルファトリフルオリド1.6gに2-(3-オキソブチル)-2-(3,3,3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル1.2gを徐々に加え、室温に戻し3時間攪拌した。その後、反応混合物を水に加え、メチルtert-ブチルエーテルで抽出した。有機層を水、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、2-(3,3-ジフロロブチル)-2-(3,3,3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル（以下、本発明化合物（64）と記す。）0.85gを得た。

本発明化合物（64）

<sup>1</sup>H-NMR(CDC1<sub>3</sub>, TMS) δ(ppm): 1.68(3H, m) 2.18~2.27(6H, m)、2.43~2.56(2H, m)

【0140】

製造例65

ジメチルスルホキシド20m1に2-(2,2,3,3,4,4,5,5-オクタフルオロペンチル)マロノニトリル3.2g及び1,3-ジブロモプロパン8.6gを溶解し、炭酸カリウム3.0gを加え、室温で2時間攪拌した。その後、反応混合物に希塩酸を加え、メチルtert-ブチルエーテルで抽出した。有機層を水、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、2-(3-ブロモプロピル)-2-(2,2,3,3,4,4,5,5-オクタフルオロペンチル)マロノニトリル（以下、本発明化合物（65）と記す。）3.2gを得た。

本発明化合物（65）

<sup>1</sup>H-NMR(CDC1<sub>3</sub>, TMS) δ(ppm): 2.30(4H, m)、2.78(2H, t)、3.52(2H, t)、6.02(1H, tt)

【0141】

製造例66

ジメチルスルホキシド5m1に2-(2,2,3,3,4,4,5,5-オクタフルオロペンチル)マロノニトリル1.4g及び1-ヨード-4,4,4-トリフルオロブタン1.2gを溶解し、炭酸カリウム0.83gを加え、室温で5時間攪拌した。その後、反

応混合物に希塩酸を加え、メチル *tert*-ブチルエーテルで抽出した。有機層を水、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、2-(2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5-オクタフルオロペンチル)-2-(4, 4, 4-トリフルオロブチル)マロノニトリル（以下、本発明化合物（66）と記す。）0.35gを得た。

#### 本発明化合物（66）

<sup>1</sup>H-NMR (CDCl<sub>3</sub>, TMS) δ (ppm) : 2.01~2.13 (2H, m)、2.16~2.32 (4H, m)、2.78 (2H, t)、6.02 (1H, tt)

#### 【0142】

#### 製造例 67

ジメチルスルホキシド5m1に2-(2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5-オクタフルオロベンチル)マロノニトリル1.4g及び1, 2-ジクロロ-4-ヨード-1, 1, 2-トリフルオロブタン1.5gを溶解し、炭酸カリウム0.83gを加え、室温で9時間攪拌した。その後、反応混合物に希塩酸を加え、メチル *tert*-ブチルエーテルで抽出した。有機層を水、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、2-(3, 4-ジクロロ-3, 4, 4-トリフルオロブチル)-2-(2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5-オクタフルオロベンチル)マロノニトリル（以下、本発明化合物（67）と記す。）0.05gを得た。

#### 本発明化合物（67）

<sup>1</sup>H-NMR (CDCl<sub>3</sub>, TMS) δ (ppm) : 2.42~2.49 (2H, m)、2.54~2.70 (2H, m)、2.87 (2H, t)、6.07 (1H, tt)

#### 【0143】

#### 製造例 68

ジメチルスルホキシド5m1に2-(2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5-オクタフルオロベンチル)マロノニトリル1.4g及び1-ヨード-3, 3, 4, 4, 4-ペンタフルオロブタン1.4gを溶解し、炭酸カリウム0.83gを加え、室温で7時間攪拌した。その後、反応混合物に希塩酸を加え、メチル *tert*-ブチルエーテルで抽出した。有機層を水、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、2-(2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5-オクタフルオロベンチル)-2-(3, 3, 4, 4, 4-ペンタフルオロブチル)マロノニトリル（以下、本発明化合物（68）と記す。）0.45gを得た。

#### 本発明化合物（68）

<sup>1</sup>H-NMR (CDCl<sub>3</sub>, TMS) δ (ppm) : 2.40~2.60 (4H, m)、2.87 (2H, t)、6.07 (1H, tt)

#### 【0144】

#### 製造例 69

2-(2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5-オクタフルオロベンチル)マロノニトリル1.4gをテトラブチルアンモニウムフルオリドのテトラヒドロフラン溶液(1モル/L)10m1に溶解させ、0℃に冷却した。2-クロロ-3, 3, 3-トリフルオロブロペン5m1を加え、ゆっくりと室温に戻し3日間攪拌した。その後、反応混合物に希塩酸を加え、メチル *tert*-ブチルエーテルで抽出した。有機層を水、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、2-(2-クロロ-3, 3, 3-トリフルオロブロピル)-2-(2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5-オクタフルオロベンチル)マロノニトリル（以下、本発明化合物（69）と記す。）0.03gを得た。

#### 本発明化合物（69）

<sup>1</sup>H-NMR (CDCl<sub>3</sub>, TMS) δ (ppm) : 2.67~2.80 (2H, m)、2

. 86~3.06 (2H, m)、4.50~4.58 (1H, m)、6.07 (1H, t)  
t)

## 【0145】

## 製造例70

0℃に冷却したジエチルアミノサルファトリフルオリド1.6gに2-(3-オキソペニチル)-2-(3,3,3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル1.2gを徐々に加え、室温に戻し5時間攪拌した。その後、反応混合物を水に加え、メチルtert-ブチルエーテルで抽出した。有機層を水、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、2-(3,3-ジフルオロベンチル)-2-(3,3,3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(70)と記す。)0.15gを得た。

## 本発明化合物(70)

<sup>1</sup>H-NMR(CDC13, TMS) δ(ppm): 1.07 (3H, t)、1.87~2.01 (2H, m)、2.16~2.28 (6H, m)、2.48~2.60 (2H, m)

## 【0146】

## 製造例71

エチレングリコールジメチルエーテル5m1に2-(2,2,3,3,4,4,5,5-オクタフルオロベンチル)マロノニトリル1.4g及び1-ヨード-3,3,4,4,5,5-ヘプタフルオロベンタン1.6gを溶解し、炭酸カリウム0.83gを加え、室温で8時間攪拌した。その後、反応混合物に希塩酸を加え、メチルtert-ブチルエーテルで抽出した。有機層を水、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、2-(3,3,4,4,5,5,5-ヘプタフルオロベンチル)-2-(2,2,3,3,4,4,5,5-オクタフルオロベンチル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(71)と記す。)0.75gを得た。

## 本発明化合物(71)

<sup>1</sup>H-NMR(CDC13, TMS) δ(ppm): 2.41~2.45 (2H, m)、2.50~2.64 (2H, m)、2.87 (2H, t)、6.07 (1H, tt)

## 【0147】

## 製造例72

ジメチルスルホキシド10m1に2-(2,2,3,3,4,4,5,5-オクタフルオロベンチル)マロノニトリル1.4g及びブロモメチルシクロプロパン1.4gを溶解し、炭酸カリウム1.4gを加え、室温で2時間攪拌した。その後、反応混合物に希塩酸を加え、メチルtert-ブチルエーテルで抽出した。有機層を水、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、2-シクロプロピルメチル-2-(2,2,3,3,4,4,5,5-オクタフルオロベンチル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(72)と記す。)0.35gを得た。

## 本発明化合物(72)

<sup>1</sup>H-NMR(CDC13, TMS) δ(ppm): 0.43 (2H, dd)、0.78 (2H, dd)、1.06~1.13 (1H, m)、2.09 (2H, d)、2.81 (2H, t)、6.06 (1H, tt)

## 【0148】

## 製造例73

ジメチルスルホキシド10m1に2-(2,2,3,3,4,4,5,5-オクタフルオロベンチル)マロノニトリル1.4g及び4-ブロモ-1-ブテン1.4gを溶解し、炭酸カリウム1.4gを加え、室温で5時間攪拌した。その後、反応混合物に希塩酸を加え、メチルtert-ブチルエーテルで抽出した。有機層を水、飽和炭酸水素ナトリウ

ム水溶液、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、2-(3-ブテニル)-2-(2,2,3,3,4,4,5,5-オクタフルオロペンチル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(73)と記す。)0.09gを得た。

#### 本発明化合物(73)

<sup>1</sup>H-NMR(CDC1<sub>3</sub>, TMS) δ(ppm) : 2.18~2.22(2H, m)、2.50~2.55(2H, m)、2.79(2H, t)、5.15(2H, m)、5.78~5.87(1H, m)、6.07(1H, tt)

#### 【0149】

##### 製造例74

エチレングリコールジメチルエーテル10mlに2-(2,2,3,3,4,4,5,5-オクタフルオロペンチル)マロノニトリル1.4g及び1-ブロモ-3-フルオロプロパン1.0gを溶解し、炭酸カリウム0.97gを加え、室温で10時間攪拌した。その後、反応混合物に希塩酸を加え、メチルtert-ブチルエーテルで抽出した。有機層を水、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、2-(3-フルオロプロピル)-2-(2,2,3,3,4,4,5,5-オクタフルオロペンチル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(74)と記す。)0.67gを得た。

#### 本発明化合物(74)

<sup>1</sup>H-NMR(CDC1<sub>3</sub>, TMS) δ(ppm) : 2.10~2.23(2H, m)、2.27~2.31(2H, m)、2.81(2H, t)、4.58(2H, dt)、6.07(1H, tt)

#### 【0150】

##### 製造例75

エチレングリコールジメチルエーテル10mlに2-(2,2,3,3,4,4,5,5-オクタフルオロペンチル)マロノニトリル1.4g及び1-ブロモ-3,4,4-トリフルオロー-3-ブテン1.3gを溶解し、炭酸カリウム0.97gを加え、室温で10時間攪拌した。その後、反応混合物に希塩酸を加え、メチルtert-ブチルエーテルで抽出した。有機層を水、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、2-(2,2,3,3,4,4,5,5-オクタフルオロペンチル)-2-(3,4,4-トリフルオロー-3-ブテニル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(75)と記す。)0.45gを得た。

#### 本発明化合物(75)

<sup>1</sup>H-NMR(CDC1<sub>3</sub>, TMS) δ(ppm) : 2.35~2.39(2H, m)、2.74~2.87(4H, m)、6.06(1H, tt)

#### 【0151】

##### 製造例76

エチレングリコールジメチルエーテル10mlに2-(2,2,3,3,4,4,5,5-オクタフルオロペンチル)マロノニトリル1.4g及び1-ブロモ-2-プロピン0.83gを溶解し、炭酸カリウム0.97gを加え、室温で4時間攪拌した。その後、反応混合物に希塩酸を加え、メチルtert-ブチルエーテルで抽出した。有機層を水、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、2-(2-プロピニル)-2-(2,2,3,3,4,4,5,5-オクタフルオロペンチル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(76)と記す。)0.65gを得た。

#### 本発明化合物(76)

<sup>1</sup>H-NMR(CDC1<sub>3</sub>, TMS) δ(ppm) : 2.52(1H, t)、2.94(2H, t)、3.14(2H, d)、6.07(1H, tt)

## 【0152】

## 製造例77

エチレングリコールジメチルエーテル10m1に2-(2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5-オクタフルオロペンチル)マロノニトリル1.4g及び1-ブロモ-3-メチルブタン1.1gを溶解し、炭酸カリウム0.97gを加え、室温で5時間攪拌した。その後、反応混合物に希塩酸を加え、メチルtert-ブチルエーテルで抽出した。有機層を水、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、2-(3-メチルブチル)-2-(2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5-オクタフルオロペンチル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(77)と記す。)0.15gを得た。

本発明化合物(77)

<sup>1</sup>H-NMR(CDC13, TMS) δ(ppm): 0.98(6H, d)、1.58~1.74(3H, m)、2.08~2.12(2H, m)、2.77(2H, t)、6.06(1H, t)

## 【0153】

## 製造例78

エチレングリコールジメチルエーテル10m1に2-(2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5-オクタフルオロペンチル)マロノニトリル1.4g及び1-ブロモ-3-メチル-2-ブテン1.1gを溶解し、炭酸カリウム0.97gを加え、室温で7時間攪拌した。その後、反応混合物に希塩酸を加え、メチルtert-ブチルエーテルで抽出した。有機層を水、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、2-(3-メチル-2-ブテニル)-2-(2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5-オクタフルオロペンチル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(78)と記す。)0.50gを得た。

本発明化合物(78)

<sup>1</sup>H-NMR(CDC13, TMS) δ(ppm): 1.76(3H, s)、1.86(3H, s)、2.73(2H, t)、2.85(2H, d)、5.30(1H, t)、6.07(1H, t)

## 【0154】

## 製造例79

エチレングリコールジメチルエーテル10m1に2-(2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5-オクタフルオロペンチル)マロノニトリル1.4g及び(2, 2, 3, 3, 4, 4, 4-ヘプタフルオロブチル)トリフルオロメタンスルホン酸エステル3.3gを溶解し、炭酸カリウム0.97gを加え、室温で7時間攪拌した。その後、反応混合物に希塩酸を加え、メチルtert-ブチルエーテルで抽出した。有機層を水、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、2-(2, 2, 3, 3, 4, 4, 4-ヘプタフルオロブチル)-2-(2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5-オクタフルオロペンチル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(79)と記す。)0.07gを得た。

本発明化合物(79)

<sup>1</sup>H-NMR(CDC13, TMS) δ(ppm): 3.01(4H, t)、6.07(1H, t)

## 【0155】

## 製造例80

エチレングリコールジメチルエーテル10m1に2-(2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5-オクタフルオロペンチル)マロノニトリル1.4g及び1-ヨードブタン1.3gを溶解し、炭酸カリウム0.97gを加え、室温で7時間攪拌した。その後、反応混合物に希塩酸を加え、メチルtert-ブチルエーテルで抽出した。有機層を水、飽和炭酸水

素ナトリウム水溶液、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、2-ブチル-2-(2,2,3,3,4,4,5,5-オクタフルオロペンチル)マロノニトリル（以下、本発明化合物(80)と記す。）1.1gを得た。

#### 本発明化合物(80)

<sup>1</sup>H-NMR(CDC13, TMS) δ(ppm) : 1.00(3H, t), 1.43~1.53(2H, m), 1.69~1.77(2H, m), 2.07~2.12(2H, m), 2.72(2H, t), 6.06(1H, tt)

#### 【0156】

##### 製造例81

エチレングリコールジメチルエーテル10mlに2-(2,2,3,3,4,4,5,5-オクタフルオロペンチル)マロノニトリル1.4g及び(2,2,3,4,4,4-ヘキサフルオロブチル)トリフルオロメタンスルホン酸エステル3.1gを溶解し、炭酸カリウム0.97gを加え、室温で7時間攪拌した。その後、反応混合物に希塩酸を加え、メチルtert-ブチルエーテルで抽出した。有機層を水、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、2-(2,2,3,3,4,4,5,5-オクタフルオロペンチル)マロノニトリル（以下、本発明化合物(81)と記す。）0.06gを得た。

#### 本発明化合物(81)

<sup>1</sup>H-NMR(CDC13, TMS) δ(ppm) : 2.89~3.04(4H, m), 4.89~5.02(1H, m), 6.07(1H, tt)

#### 【0157】

##### 製造例82

エチレングリコールジメチルエーテル10mlに2-(2,2,3,3,4,4,5,5-オクタフルオロペンチル)マロノニトリル1.4g及び1-ヨードプロパン1.3gを溶解し、炭酸カリウム0.97gを加え、室温で10時間攪拌した。その後、反応混合物に希塩酸を加え、メチルtert-ブチルエーテルで抽出した。有機層を水、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、2-(2,2,3,3,4,4,5,5-オクタフルオロペンチル)-2-プロピルマロノニトリル（以下、本発明化合物(82)と記す。）1.1gを得た。

#### 本発明化合物(82)

<sup>1</sup>H-NMR(CDC13, TMS) δ(ppm) : 1.10(3H, t), 1.75~1.85(2H, m), 2.06~2.10(2H, m), 2.77(2H, t), 6.07(1H, tt)

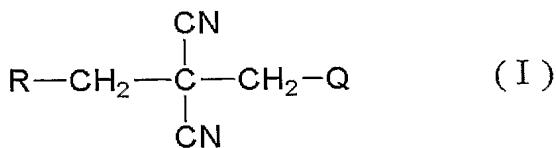
エチレングリコールジメチルエーテル10mlに2-(2,2,3,3,4,4,5,5-オクタフルオロペンチル)マロノニトリル1.4g及び1-ブロモ-3,3,3-トリフルオロブチル1.2gを溶解し、炭酸カリウム0.97gを加え、室温で10時間攪拌した。その後、反応混合物に希塩酸を加え、メチルtert-ブチルエーテルで抽出した。有機層を水、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、本発明化合物(31)0.74gを得た。

#### 【0158】

以下、本発明の化合物を具体的に示すが、本発明はこれらに限定されるものではない。

#### 【0159】

式(I)で示される化合物；



なお、式中の R 及び Q の組合せを (表 1) ~ (表 4) に示す。

【0160】

【表 1】

化合物番号	R	Q
1	$\text{CH}_2\text{CF}_3$	$\text{CH}_2\text{CH}_2\text{Cl}$
2	$\text{CH}_2\text{CF}_3$	$\text{CH}(\text{CH}_3)\text{CH}_2\text{Cl}$
3	$\text{CH}_2\text{CF}_3$	$\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{Cl}$
4	$\text{CH}_2\text{CF}_3$	$\begin{array}{c} \text{CCl}_2 \\   \\ \text{CH} \\   \\ \text{CH}_2 \end{array}$
5	$\text{CH}_2\text{CF}_3$	$\text{CH}_2\text{CF}_3$
6	$\text{CH}_2\text{CF}_3$	$\text{CH}_3$
7	$\text{CH}_2\text{CF}_3$	$\text{CH}_2\text{CH}_3$
8	$\text{CH}_2\text{CF}_3$	$\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_3$
9	$\text{CH}_2\text{CF}_3$	$\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_3$
10	$\text{CH}_2\text{CF}_3$	$\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_3$
11	$\text{CH}_2\text{CF}_3$	$\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_3$
12	$\text{CH}_2\text{CF}_3$	$\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_3$
13	$\text{CH}_2\text{CF}_3$	$\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_3$
14	$\text{CH}_2\text{CF}_3$	$\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_3$
15	$\text{CH}_2\text{CF}_3$	$\text{CH}=\text{CH}_2$
16	$\text{CH}_2\text{CF}_3$	$\text{CH}_2\text{CH}=\text{CH}_2$
17	$\text{CH}_2\text{CF}_3$	$\text{CH}_2\text{CF}=\text{CF}_2$
18	$\text{CH}_2\text{CF}_3$	$\begin{array}{c} \text{CH}_2 \\   \\ \text{CH} \\   \\ \text{CH}_2 \end{array}$
19	$\text{CH}_2\text{CF}_3$	$\begin{array}{c} \text{CH}_2 \\   \\ \text{CH} \\   \\ \text{CH}_2 \end{array}$
20	$\text{CH}_2\text{CF}_3$	$\text{CF}_2\text{CHF}_2$
21	$\text{CH}_2\text{CF}_3$	$\text{CF}_3$
22	$\text{CH}_2\text{CF}_3$	$\text{CF}_2\text{CF}_3$
23	$\text{CH}_2\text{CF}_3$	$\text{CF}_2\text{CHFCF}_3$
24	$\text{CH}_2\text{CF}_3$	$\text{CF}_2\text{CF}_2\text{CF}_3$
25	$\text{CH}_2\text{CF}_3$	$\text{CH}_2\text{F}$

【0161】

【表2】

化合物番号	R	Q
26	CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>	CH <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>
27	CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>	C≡CH
		CH <sub>2</sub> -CH <sub>2</sub>
28	CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>	CH \\ CH <sub>2</sub> -CH <sub>2</sub>
29	CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>	CH <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>
30	CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>	CH <sub>2</sub> CFC1CBrF <sub>2</sub>
31	CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>	CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CHF <sub>2</sub>
32	CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>	CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CHF <sub>2</sub>
33	CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>	CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>
34	CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>	CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>
35	CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>	CH <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CBrF <sub>2</sub>
36	CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>	CH <sub>2</sub> CF(CF <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>
37	CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>	CH <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>
38	CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>	CH <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>
39	CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>	CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> F
40	CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>	CH <sub>2</sub> Br
41	CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>	CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> Br
42	CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>	CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH=CH <sub>2</sub>
43	CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>	C(CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>
44	CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>	C(CH <sub>3</sub> )=CH <sub>2</sub>
45	CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>	CH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>
46	CF <sub>2</sub> CHFCF <sub>3</sub>	CH <sub>2</sub> CFC1CF <sub>2</sub> Br
47	CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CHF <sub>2</sub>	CH=CH <sub>2</sub>
48	CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>	CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>
49	CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CHF <sub>2</sub>	CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CHF <sub>2</sub>
50	CF <sub>2</sub> CHF <sub>2</sub>	CF <sub>2</sub> CHF <sub>2</sub>

【0162】

【表3】

化合物番号	R	Q
51	CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CHF <sub>2</sub>	CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH <sub>3</sub>
52	CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>	Br
53	CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>	CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>
54	CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>	CH <sub>2</sub> CFC1CF <sub>2</sub> Cl
55	CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>	CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> F
56	CH <sub>2</sub> CF(CF <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	CH <sub>2</sub> CF(CF <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>
57	CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CHF <sub>2</sub>	CHBrCF <sub>3</sub>
58	CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>	CHClCF <sub>3</sub>
59	CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CHF <sub>2</sub>	CH <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CH <sub>3</sub>
60	CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>	CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>
61	CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CHF <sub>2</sub>	CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> H
62	CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CHF <sub>2</sub>	CH <sub>2</sub> CHBrCH <sub>3</sub>
63	CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>	CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> Br
64	CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>	CH <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CH <sub>3</sub>
65	CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CHF <sub>2</sub>	CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> Br
66	CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CHF <sub>2</sub>	CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>
67	CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CHF <sub>2</sub>	CH <sub>2</sub> CFC1CF <sub>2</sub> Cl
68	CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CHF <sub>2</sub>	CH <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>
69	CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CHF <sub>2</sub>	CHClCF <sub>3</sub>
70	CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>	CH <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH <sub>3</sub>
71	CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CHF <sub>2</sub>	CH <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>
72	CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CHF <sub>2</sub>	
73	CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CHF <sub>2</sub>	CH <sub>2</sub> CH=CH <sub>2</sub>
74	CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> F	CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CHF <sub>2</sub>
75	CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CHF <sub>2</sub>	CH <sub>2</sub> CF=CF <sub>2</sub>

【0163】

【表4】

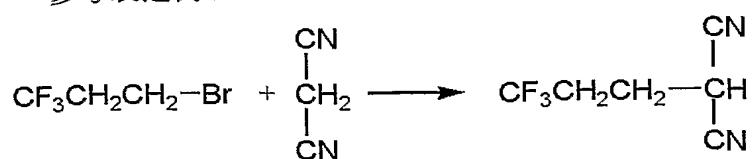
化合物番号	R	Q
76	CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CHF <sub>2</sub>	C≡CH
77	CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CHF <sub>2</sub>	CH <sub>2</sub> CH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>
78	CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CHF <sub>2</sub>	CH=C(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>
79	CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CHF <sub>2</sub>	CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>
80	CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CHF <sub>2</sub>	CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH <sub>3</sub>
81	CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CHF <sub>2</sub>	CF <sub>2</sub> CHFCF <sub>3</sub>
82	CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CHF <sub>2</sub>	CH <sub>2</sub> CH <sub>3</sub>
83	CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>	$\begin{array}{c} \text{CH}_2-\text{CH}_2 \\   \quad \diagup \\ \text{CH} \quad \text{CF}_2 \\   \quad \diagdown \\ \text{CH}_2-\text{CH}_2 \end{array}$
84	CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>	$\begin{array}{c} \text{H}_2 \\   \\ \text{CH}_2-\text{CH} \quad \text{CF}_2 \\   \quad \diagup \\ \text{CH}_2-\text{CH}_2 \quad \text{CH}-\text{CF}_3 \\   \quad \diagdown \\ \text{CH}_2-\text{CH}_2 \quad \text{CH}-\text{CH}_3 \\   \quad \diagdown \\ \text{CH}_2-\text{CH}_2 \quad \text{CH}-\text{CH}_3 \\   \quad \diagdown \\ \text{CH}_2-\text{CH}_2 \quad \text{CH}-\text{CH}_3 \end{array}$ <p>(cis / trans = 5 / 1 mixture)</p>
85	CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>	$\begin{array}{c} \text{CH}_2-\text{CH}_2 \\   \quad \diagup \\ \text{CH} \quad \text{CH}-\text{CF}_3 \\   \quad \diagdown \\ \text{CH}_2-\text{CH}_2 \quad \text{CH}-\text{CH}_3 \\   \quad \diagdown \\ \text{CH}_2-\text{CH}_2 \quad \text{CH}-\text{CH}_3 \\   \quad \diagdown \\ \text{CH}_2-\text{CH}_2 \quad \text{CH}-\text{CH}_3 \end{array}$ <p>(cis / trans = 2 / 1 mixture)</p>
86	CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>	$\begin{array}{c} \text{CH}_2-\text{CH} \\   \quad \diagup \\ \text{CH} \quad \text{CH}_2 \\   \quad \diagdown \\ \text{CH}_2-\text{CH}_2 \quad \text{CH}_2-\text{CH}_2 \\   \quad \diagdown \\ \text{CH}_2-\text{CH}_2 \quad \text{CH}_2-\text{CH}_2 \end{array}$ <p>(cis form)</p>
87	CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>	$\begin{array}{c} \text{CH}_2-\text{CH} \\   \quad \diagup \\ \text{CH} \quad \text{CH}_2 \\   \quad \diagdown \\ \text{CH}_2-\text{CH}_2 \quad \text{CH}_2-\text{CH}_2 \\   \quad \diagdown \\ \text{CH}_2-\text{CH}_2 \quad \text{CH}_2-\text{CH}_2 \end{array}$ <p>(cis form)</p>
88	CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>	$\begin{array}{c} \text{CH}_2-\text{CH} \\   \quad \diagup \\ \text{CH} \quad \text{CH}_2 \\   \quad \diagdown \\ \text{CH}_2-\text{CH}_2 \quad \text{CH}_2-\text{CH}_2 \\   \quad \diagdown \\ \text{CH}_2-\text{CH}_2 \quad \text{CH}_2-\text{CH}_2 \end{array}$ <p>(cis form)</p>
89	CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>	CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>
90	CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>	CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CH <sub>3</sub>
91	CF <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>	CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CHF <sub>2</sub>
92	CH <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>	CH <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>
93	CF <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>	CF <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>
94	CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>	CF <sub>2</sub> CF=CF <sub>2</sub>
95	CF <sub>2</sub> CHFCF <sub>3</sub>	CF <sub>2</sub> CHFCF <sub>3</sub>

## 【0164】

次に、本発明化合物の中間体の製造につき、参考製造例を示す。

## 【0165】

参考製造例 1



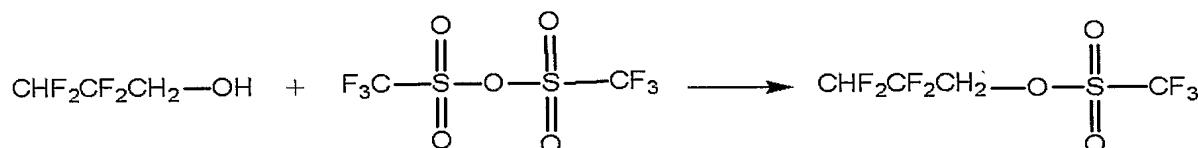
マロノニトリル 27.6 g を N, N-ジメチルホルムアミド 50 ml に溶解し、炭酸カリウム 27.6 g を加え、室温で 1 時間攪拌した。その後、1-ブロモ-3,3,3-トリフルオロプロパン 17.7 g と N, N-ジメチルホルムアミド 20 ml との混合物を加え、さらに 1 時間攪拌した。その後、反応混合物を水に注加し、ジエチルエーテルで抽出した。有機層を水、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、2-(3,3,3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル 11.3 g を得た。

2-(3,3,3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル

<sup>1</sup>H-NMR (CDCl<sub>3</sub>, TMS) δ (ppm) : 2.32~2.42 (2H, m), 2.43~2.52 (2H, m), 3.91 (1H, t)

### 【0166】

参考製造例 2



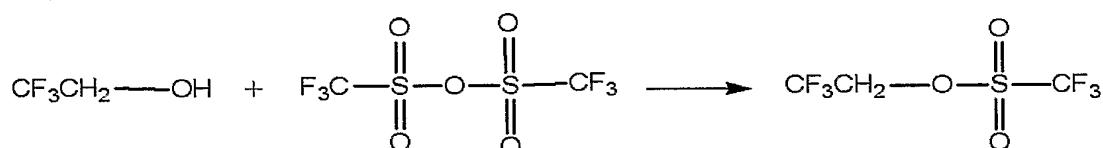
トリフルオロメタンスルホン酸無水物 100 ml を 0°C で 2,2,3,3-テトラフルオロプロパノール 79.2 g にゆっくりと滴下した。室温にて 1 時間攪拌し、さらに 60°C で 3 時間攪拌した。その後、反応混合物を氷水に反応混合物を水に注加し、ジエチルエーテルで抽出した。有機層を水、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮し、(2,2,3,3-テトラフルオロプロピル)トリフルオロメタンスルホン酸エステル 100 g を得た。

(2,2,3,3-ヘキサフルオロプロピル)トリフルオロメタンスルホン酸エステル

<sup>1</sup>H-NMR (CDCl<sub>3</sub>, TMS) δ (ppm) : 4.73 (2H, t), 5.97 (1H, t, t)

### 【0167】

参考製造例 3



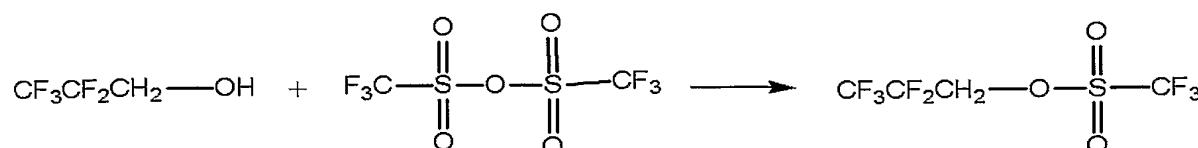
2,2,3,3-テトラフルオロプロパノールの代わりに 2,2,2-トリフルオロエタノール 2.0 g を用い、参考製造例 2 に準じて、(2,2,2-ペンタフルオロエチル)トリフルオロメタンスルホン酸エステル 1.2 g を得た。

(2,2,2-トリフルオロエチル)トリフルオロメタンスルホン酸エステル

<sup>1</sup>H-NMR (CDCl<sub>3</sub>, TMS) δ (ppm) : 4.71 (2H, q)

### 【0168】

参考製造例 4



2,2,3,3-テトラフルオロプロパノールの代わりに 2,2,3,3,3-ペンタフルオロプロパノール 4.8 g を用い、参考製造例 2 に準じて、(2,2,3,3,3-ペンタフルオロプロピル)トリフルオロメタンスルホン酸エステル 4.1 g を得た。

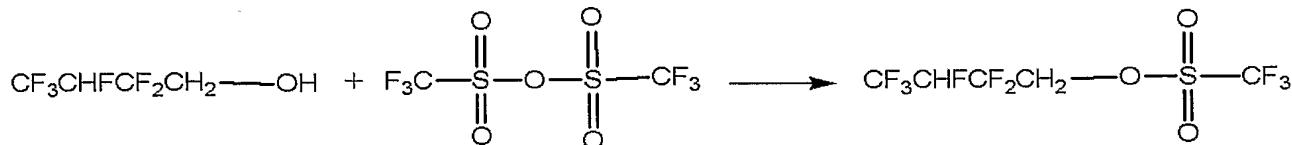
(2,2,3,3,3-ペンタフルオロプロピル)トリフルオロメタンスルホン酸エス

テル

<sup>1</sup>H-NMR (CDCl<sub>3</sub>, TMS) δ (ppm) : 4.72 (2H, t)

【0169】

参考製造例5



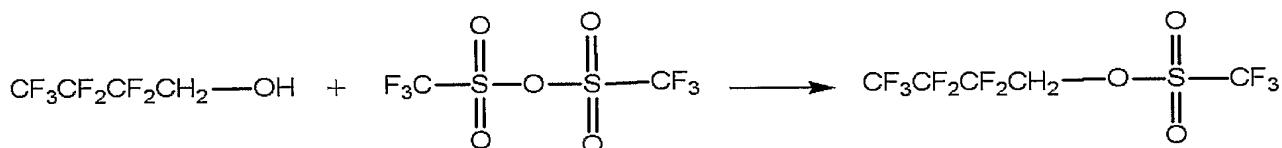
2, 2, 3, 3-テトラフルオロプロパノールの代わりに2, 2, 3, 4, 4, 4-ヘキサフルオロブタノール14.1gを用い、参考製造例2に準じて、(2, 2, 3, 4, 4, 4-ヘキサフルオロブチル)トリフルオロメタンスルホン酸エステル16.5gを得た。

(2, 2, 3, 4, 4, 4-ヘキサフルオロブチル)トリフルオロメタンスルホン酸エステル

<sup>1</sup>H-NMR (CDCl<sub>3</sub>, TMS) δ (ppm) : 4.71~4.79 (2H, m), 4.92~5.11 (1H, m)

【0170】

参考製造例6



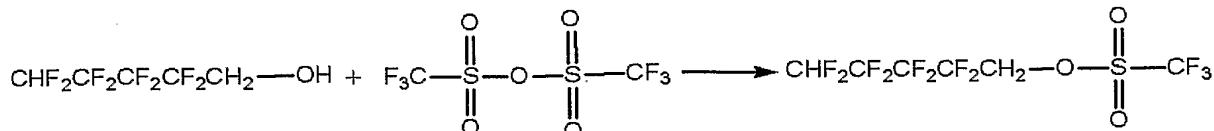
2, 2, 3, 3-テトラフルオロプロパノールの代わりに2, 2, 3, 3, 4, 4, 4-ヘプタフルオロブタノール8.0gを用い、参考製造例2に準じて、(2, 2, 3, 3, 4, 4, 4-ヘプタフルオロブチル)トリフルオロメタンスルホン酸エステル10gを得た。

(2, 2, 3, 3, 4, 4, 4-ヘプタフルオロブチル)トリフルオロメタンスルホン酸エステル

<sup>1</sup>H-NMR (CDCl<sub>3</sub>, TMS) δ (ppm) : 4.80 (2H, t)

【0171】

参考製造例7



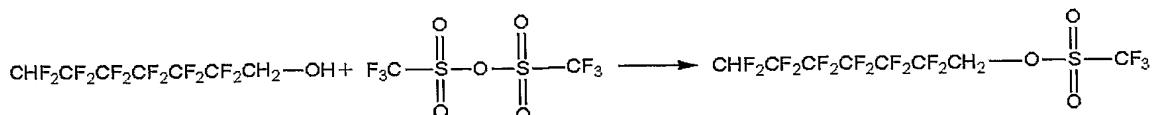
2, 2, 3, 3-テトラフルオロプロパノールの代わりに2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5-オクタフルオロペンタノール139gを用い、参考製造例2に準じて、(2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5-オクタフルオロペンチル)トリフルオロメタンスルホン酸エステル187gを得た。

(2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5-オクタフルオロペンチル)トリフルオロメタンスルホン酸エステル

<sup>1</sup>H-NMR (CDCl<sub>3</sub>, TMS) δ (ppm) : 4.82 (2H, m), 6.04 (1H, t)

【0172】

参考製造例8



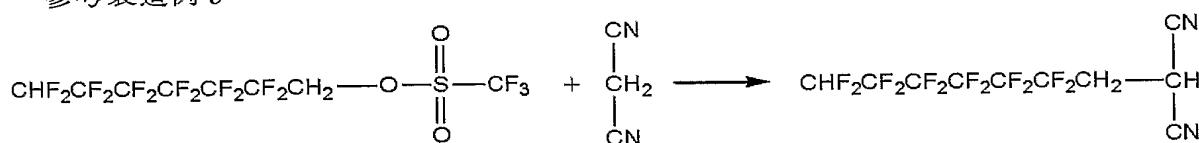
2, 2, 3, 3-テトラフルオロプロパノールの代わりに2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5, 6, 6, 7, 7-ドデカフルオロヘプタノール16.6gを用い、参考製造例2に準じて、(2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5, 6, 6, 7, 7-ドデカフルオロヘプチル)トリフルオロメタンスルホン酸エステル20.5gを得た。

(2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5, 6, 6, 7, 7-ドデカフルオロヘプチル)トリフルオロメタンスルホン酸エステル

<sup>1</sup>H-NMR(CDC13, TMS) δ(ppm): 4.83(2H, t)、6.07(1H, t)

### 【0173】

参考製造例9



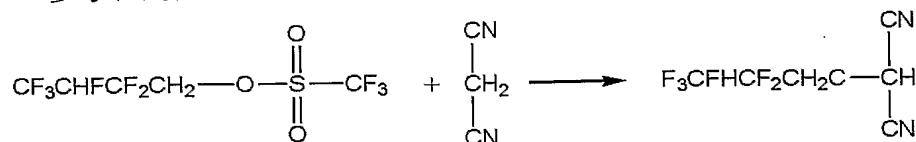
ジメチルスルホキシド20mlに(2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5, 6, 6, 7, 7-ドデカフルオロヘプチル)トリフルオロメタンスルホン酸エステル14.6gを溶解し、炭酸カリウム5.5gを加えた。ジメチルスルホキシド10mlに溶解したマロノニトリル2.6gをゆっくりと滴下し、室温で3時間攪拌した。反応混合物を水に注加し、ジエチルエーテルで抽出した。有機層を水、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、2-(2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5, 6, 6, 7, 7-ドデカフルオロヘプチル)マロノニトリル2.0gを得た。

2-(2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5, 6, 6, 7, 7-ドデカフルオロヘプチル)マロノニトリル

<sup>1</sup>H-NMR(CDC13, TMS) δ(ppm): 2.91(2H, dt)、4.14(1H, t)、6.05(1H, tt)

### 【0174】

参考製造例10



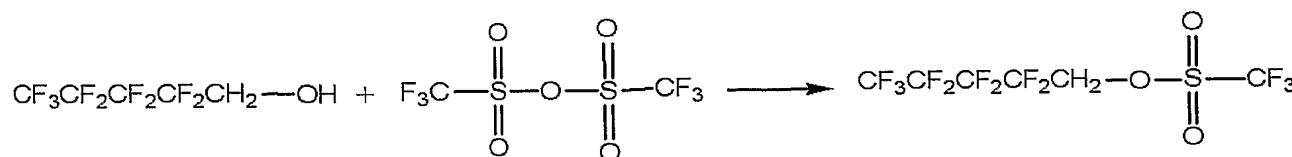
ジメチルスルホキシド15mlに(2, 2, 3, 4, 4, 4-ペンタフルオロブチル)トリフルオロメタンスルホン酸8.0gを溶解し、炭酸カリウム6.9gを加えた。ジメチルスルホキシド15mlに溶解したマロノニトリル5.0gをゆっくりと滴下し、室温で3時間攪拌した。反応混合物を水に注加し、ジエチルエーテルで抽出した。有機層を水、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、2-(2, 2, 3, 4, 4, 4-ペンタフルオロブチル)マロノニトリル2.0gを得た。

2-(2, 2, 3, 4, 4, 4-ペンタフルオロブチル)マロノニトリル

<sup>1</sup>H-NMR(CDC13, TMS) δ(ppm): 2.79~2.91(2H, m)、4.15(1H, t)、4.84~5.04(1H, m)

### 【0175】

参考製造例11



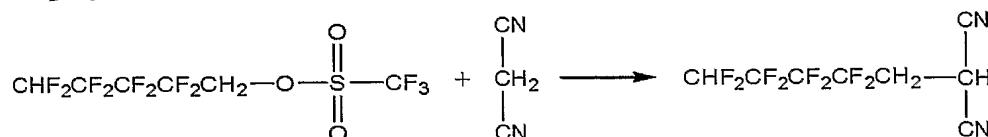
トリフルオロメタンスルホン酸無水物 6. 8 g を 0 ℃ で 2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5, 5-ノナフルオロペンタノール 5. 0 g に ゆっくりと滴下した。室温にて 5 分間攪拌し、さらに 100 ℃ で 3 時間攪拌した。その後、反応混合物を氷水に注加し、メチル *t*-ブチルエーテルで抽出した。有機層を水、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮し、(2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5, 5-ノナフルオロペンチル) トリフルオロメタンスルホン酸エステル 4. 7 g を得た。

(2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5, 5-ノナフルオロペンチル) トリフルオロメタンスルホン酸エステル

<sup>1</sup>H-NMR (CDCl<sub>3</sub>, TMS) δ (ppm) : 4. 82 (2H, t)

### 【0176】

#### 参考製造例 12



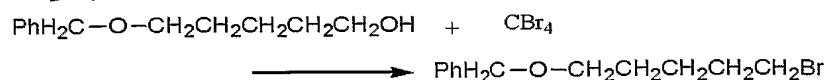
ジメチルスルホキシド 20 mL に (2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5-オクタフルオロペンチル) トリフルオロメタンスルホン酸 1.5 g 及びマロノニトリル 2. 6 g を溶解し、炭酸カリウム 5. 5 g を加え、水浴中で 3 時間攪拌した。その後、反応混合物に希塩酸を加え、メチル *t*-ブチルエーテルで抽出した。有機層を水、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、2-(2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5-オクタフルオロペンチル) マロノニトリル 2. 0 g を得た。

2-(2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5-オクタフルオロペンチル) マロノニトリル

<sup>1</sup>H-NMR (CDCl<sub>3</sub>, TMS) δ (ppm) : 2. 90 (2H, dt), 4. 15 (1H, t), 6. 06 (1H, tt)

### 【0177】

#### 参考製造例 13



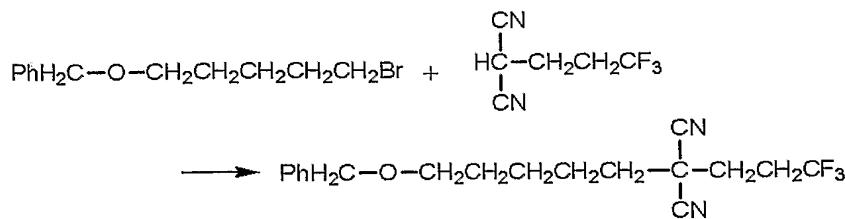
メチル *t*-ブチルエーテル 50 mL に 5-ヒドロキシペンチル ベンジルエーテル 7. 0 g、トリフェニルホスフィン 10. 6 g を加え、0 ℃ に冷却した。さらに四臭化炭素 13. 2 g を加え、室温で 3 時間攪拌した。その後、ヘキサン 100 mL を加えて後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、5-ブロモペンチル ベンジルエーテル 5. 5 g を得た。

5-ブロモペンチル ベンジルエーテル

<sup>1</sup>H-NMR (CDCl<sub>3</sub>, TMS) δ (ppm) : 1. 49~1. 57 (2H, m), 1. 61~1. 68 (2H, m), 1. 85~1. 92 (2H, m), 3. 41 (2H, t), 2. 48 (2H, t), 4. 50 (2H, s), 7. 26~7. 37 (5H, m)

### 【0178】

#### 参考製造例 14



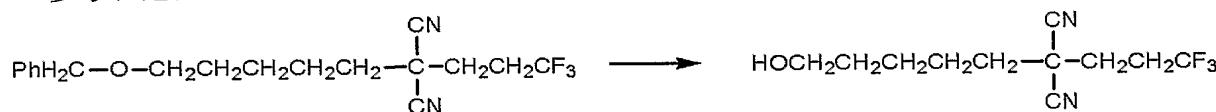
ジメチルスルホキシド 20 mL に 2-(3, 3, 3-トリフルオロプロピル) マロノニトリル 3.5 g 及び 5-ブロモペンチル ベンジルエーテル 5.5 g、ヨウ化カリウム 0.70 g を溶解し、炭酸カリウム 3.3 g を加え、室温で 9 時間攪拌した。その後、反応混合物に希塩酸を加え、メチル *tert*-ブチルエーテルで抽出した。有機層を水、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、2-(5-ベンジルオキシペンチル)-2-(3, 3, 3-トリフルオロプロピル) マロノニトリル 5.9 g を得た。

2-(5-ベンジルオキシペンチル)-2-(3, 3, 3-トリフルオロプロピル) マロノニトリル

<sup>1</sup>H-NMR (CDCl<sub>3</sub>, TMS) δ (ppm) : 1.48~1.57 (2H, m)、1.64~1.76 (4H, m)、1.95~2.00 (2H, m)、2.20~2.44 (2H, m)、2.44~2.56 (2H, m)、3.49 (2H, t)、4.50 (2H, s) 7.28~7.35 (5H, m)

### 【0179】

参考製造例 15



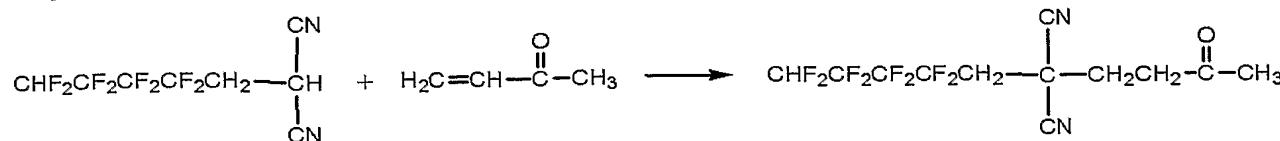
アセトニトリル 20 mL に 2-(5-ベンジルオキシペンチル)-2-(3, 3, 3-トリフルオロプロピル) マロノニトリル 1.8 g を加え、0℃に冷却した。さらにヨウ化ナトリウム 1.6 g を加え、アセトニトリル 5 mL に溶解したトリフルオロボランジエチルエーテルコンプレックス 1.3 g をゆっくりと滴下後、0℃で 1 時間、室温で 6 時間攪拌した。その後、反応混合物に水を加え、クロロホルムで抽出した。有機層を水、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、2-(5-ヒドロキシペンチル)-2-(3, 3, 3-トリフルオロプロピル) マロノニトリル 0.40 g を得た。

2-(5-ヒドロキシペンチル)-2-(3, 3, 3-トリフルオロプロピル) マロノニトリル

<sup>1</sup>H-NMR (CDCl<sub>3</sub>, TMS) δ (ppm) : 1.26 (1H, br)、1.51~1.57 (2H, m)、1.61~1.66 (2H, m)、1.72~1.79 (2H, m)、1.98~2.02 (2H, m)、2.18~2.23 (2H, m)、2.48~2.55 (2H, m)、3.69 (2H, t)

### 【0180】

参考製造例 16



アセトン 15 mL に 2-(2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5-オクタフルオロペンチル) マロノニトリル 1.4 g、メチルビニルケトン 0.70 g を溶解し、炭酸カリウム 0.83 g を加え、室温で 4 時間攪拌した。その後、反応混合物に希塩酸を加え、メチル *tert*-ブチルエーテルで抽出した。有機層を水、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリ

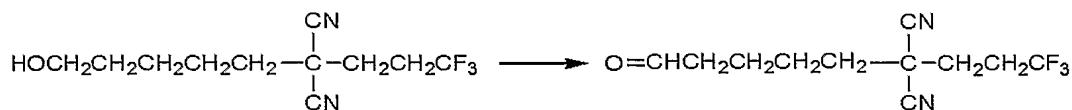
カゲルカラムクロマトグラフィーに付し、2-(2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5-オクタフルオロペンチル)-2-(3-オキソブチル)マロノニトリル0.5gを得た。

2-(2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5-オクタフルオロペンチル)-2-(3-オキソブチル)マロノニトリル

<sup>1</sup>H-NMR (CDCl<sub>3</sub>, TMS) δ (ppm) : 2.26 (3H, s)、2.39 (2H, t)、2.80 (2H, t)、2.94 (2H, t)、6.07 (1H, tt)

### 【0181】

参考製造例17



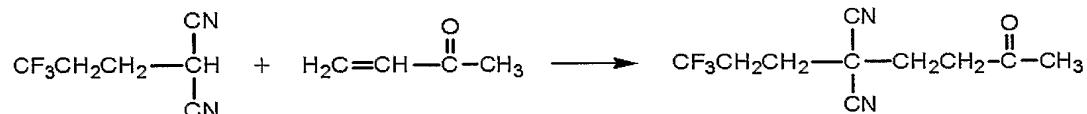
2-(5-ヒドロキシペンチル)-2-(3, 3, 3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル1.5gにデスマーチンパヨージナン (Dess-Martin periodinane) の1.5%ジクロロメタン溶液20mlをゆっくりと滴下し、室温で5時間攪拌した。その後、反応混合物を水酸化ナトリウム溶液に加え、クロロホルムで抽出した。有機層を水、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、2-(5-オキソペンチル)-2-(3, 3, 3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル1.0gを得た。

2-(5-オキソペンチル)-2-(3, 3, 3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル

<sup>1</sup>H-NMR (CDCl<sub>3</sub>, TMS) δ (ppm) : 1.73~1.78 (4H, m)、1.99~2.03 (2H, m)、2.19~2.23 (2H, m)、2.46~2.59 (4H, m)、9.81 (1H, t)

### 【0182】

参考製造例18



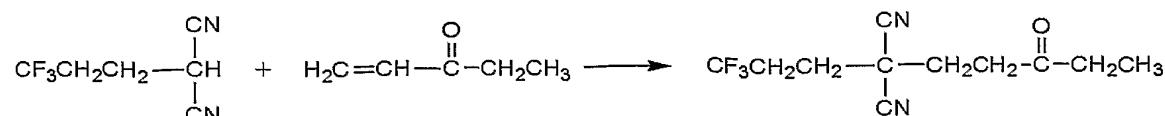
アセトン30mlに2-(3, 3, 3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル3.2g、メチルビニルケトン2.1gを溶解し、炭酸カリウム3.3gを加え、室温で4時間攪拌した。その後、反応混合物に希塩酸を加え、メチルtert-ブチルエーテルで抽出した。有機層を水、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、2-(3, 3, 3-トリフルオロプロピル)-2-(3-オキソブチル)マロノニトリル0.7gを得た。

2-(3, 3, 3-トリフルオロプロピル)-2-(3-オキソブチル)マロノニトリル

<sup>1</sup>H-NMR (CDCl<sub>3</sub>, TMS) δ (ppm) : 2.19~2.30 (7H, m)、2.46~2.55 (2H, m)、2.84~2.91 (2H, m)

### 【0183】

参考製造例19



アセトン30mlに2-(3, 3, 3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル3.2g、エチルビニルケトン1.7gを溶解し、炭酸カリウム3.3gを加え、室温で1時間攪拌した。その後、反応混合物に希塩酸を加え、メチルtert-ブチルエーテルで抽出した。有機層を水、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫

酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、2-(3,3,3-トリフルオロプロピル)-2-(3-オキソペンチル)マロノニトリル1.3gを得た。

2-(3,3,3-トリフルオロプロピル)-2-(3-オキソペンチル)マロノニトリル

<sup>1</sup>H-NMR(CDC13, TMS) δ(ppm): 1.11(3H, t), 2.22~2.26(2H, m), 2.31(2H, t), 2.46~2.58(4H, m), 2.84(2H, t)

#### 【0184】

次に製剤例を示す。なお、部は重量部を表す。また、本発明化合物は前記の化合物番号で表す。

#### 【0185】

##### 製剤例1

本発明化合物(1)～(82)の各々9部を、キシレン37.5部およびジメチルホルムアミド37.5部に溶解し、これにポリオキシエチレンスチリルフェニルエーテル10部およびドデシルベンゼンスルホン酸カルシウム6部を加え、よく搅拌混合して乳剤を得る。

#### 【0186】

##### 製剤例2

本発明化合物(1)～(82)の各々40部にソルポール5060(東邦化学登録商標名)5部を加え、よく混合して、カープレックス#80(塩野義製薬登録商標名、合成含水酸化ケイ素微粉末)32部、300メッシュ珪藻土23部を加え、ジュースミキサーで混合して、水和剤を得る。

#### 【0187】

##### 製剤例3

本発明化合物(1)～(82)の各々3部、合成含水酸化珪素微粉末5部、ドデシルベンゼンスルホン酸ナトリウム5部、ベントナイト30部およびクレー57部を加え、よく搅拌混合し、ついでこれらの混合物に適当量の水を加え、さらに搅拌し、増粒機で製粒し、通風乾燥して粒剤を得る。

#### 【0188】

##### 製剤例4

本発明化合物(1)～(82)の各々4.5部、合成含水酸化珪素微粉末1部、凝集剤としてドリレスB(三共社製)1部、クレー7部を乳鉢でよく混合した後にジュースミキサーで搅拌混合する。得られた混合物にカットクレー86.5部を加えて、充分搅拌混合し、粉剤を得る。

#### 【0189】

##### 製剤例5

本発明化合物(1)～(82)の各々10部、ポリオキシエチレンアルキルエーテルサルフェートアンモニウム塩50部を含むホワイトカーボン35部及び水55部を混合し、湿式粉碎法で微粉碎することにより、製剤を得る。

#### 【0190】

##### 製剤例6

本発明化合物(1)～(82)の各々0.5部をジクロロメタン10部に溶解し、これをアイソパーM(イソパラフィン:エクソン化学登録商標名)89.5部に混合して油剤を得る。

#### 【0191】

##### 製剤例7

本発明化合物(1)～(82)の各々0.1部、ネオチオゾール(中央化成株式会社)49.9部をエアゾール缶に入れ、エアゾールバルブを装着した後、25部のジメチルエーテル及び25部のLPGを充填し、振とうを加え、アクチュエータを装着することによ

り油性エアゾールを得る。

### 【0192】

#### 製剤例8

本発明化合物(1)～(82)の各々0.6部、BHT0.01部、キシレン5部、脱臭灯油3.39部および乳化剤「アトモス300」(アトモスケミカル社登録商標名)1部を混合溶解したものと、蒸留水50部とをエアゾール容器に充填し、バルブ部分を取り付け、該バルブを通じて噴射剤(LPG)40部を加圧充填して、水性エアゾールを得る。

### 【0193】

#### 製剤例9

0.5cm(厚さ)×69cm(長さ)×0.2cm(幅)のハニカム構造の紙細工片を一方の端から巻いて、直径5.5cm、幅0.2cmの固形担体を作製した。本発明化合物(1)～(82)の各々5部をアセトン95部に溶解した溶液を、該担体に均一に塗布した後、アセトンを風乾させて、図1及び図2に示す製剤を得る。

### 【0194】

#### 製剤例10

立体編地(商品名：フュージョン、型番：AKE69440、販売元：旭化成せんい株式会社、厚さ：4.3mm、目付：321g/m<sup>2</sup>、ポリアミド製)を直径5cmの円形に裁断し、本発明化合物(1)～(82)の各々5部をアセトン95部に溶解した溶液を、該立体編地に均一に塗布した後、アセトンを風乾させて、製剤を得る。

### 【0195】

#### 製剤例11

エチレン-メタクリル酸メチル共重合体(メタクリル酸メチル含有量：10重量%、MFR=2[g/10min])98重量部と本発明化合物(1)～(82)の各々2重量部とを、45mmφ同方向二軸押出機にて130℃で溶融混練したのち、40mmφ押出機にて150℃で溶融混練し、Tダイからシート状に押出し、冷却ロールにて冷却して、樹脂製剤を得る。

### 【0196】

#### 製剤例12

エチレン-酢酸ビニル共重合体(酢酸ビニル含有量：10重量%、MFR=2[g/10min])98重量部と本発明化合物(1)～(82)の各々2重量部とを、45mmφ同方向二軸押出機にて130℃で溶融混練したのち、40mmφ押出機にて150℃で溶融混練し、Tダイからシート状に押出し、冷却ロールにて冷却して、樹脂製剤を得る。

### 【0197】

#### 製剤例13

図3で示される折り畳み可能な構造を有する紙(2000cm<sup>2</sup>)に、本発明化合物(1)～(82)の各々5部をアセトン95部に溶解した溶液を塗布した後、アセトンを風乾させて、製剤を得る。

### 【0198】

#### 製剤例14

図4で示される折り畳み可能な構造を有する紙(2000cm<sup>2</sup>)に、本発明化合物(1)～(82)の各々5部をアセトン95部に溶解した溶液を塗布した後、アセトンを風乾させて、製剤を得る。

### 【0199】

#### 製剤例15

本発明化合物(1)～(82)の各々3.6部とアセトン14.3部とを混合し溶液を得る。これに、酸化亜鉛0.2部、α-澱粉1.0部及びアゾジカルボンアミド42.8部を加え、水38.1部を加えて混練、押出機で顆粒状に成形、乾燥させる。この顆粒2gと酸化マグネシウム50gとをアルミ製隔壁で区分された容器内に収容し、燐煙剤を得る。

## 【0200】

## 製剤例16

オレイン酸エチル7部、酸化亜鉛0.5部および $\alpha$ -澱粉2部にアゾジカルボンアミド90.5部を混合し、水を加えて混練、押出機で顆粒状に成形し、乾燥させる。この顆粒2gに対して本発明化合物(1)～(82)の各々0.58gを含有したアセトン溶液を均一に処理し乾燥させる。前記の操作により得られた本発明化合物(1)～(82)の各々を含有する顆粒と酸化カルシウム50gとをアルミ製隔壁で区分された容器内に収容し、燐煙剤を得る。

## 【0201】

## 製剤例17

本発明化合物(1)～(82)の各々2.2部とアセトン8.7部とを混合し溶液を得る。これを、アゾジカルボナミド／ニトロセルロース／酸化亜鉛／パーライトおよびポリビニルアルコールから成る3～5mmの顆粒31部に含浸させた後、室温で乾燥することにより燐煙剤用組成物を得る。過塩素酸カリウム、硝酸カリウム、硝酸グアニジン、糖類、粘結剤、アルミナ及びカオリンから作製した1～4mmの顆粒状の可燃性組成物58.1部を装着した直径3.5cm、高さ8cmの紙製の円筒容器に装填し、次にその上から燐煙剤用組成物を装填し、メッシュがついた蓋をすることにより製剤を得る。

## 【0202】

## 製剤例18

本発明化合物(1)～(82)の各々0.5gをアセトン20mlに溶解し、蚊取り線香用担体(タブ粉：粕粉：木粉を4:3:3の重量比で混合)99.4g、緑色色素0.3gと均一に攪拌混合した後、水120mlを加え、充分練り合わせたものを成型乾燥して蚊取り線香を得る。

## 【0203】

## 製剤例19

本発明化合物(1)～(82)の各々10部にクエン酸アセチルトリプチル40部、アジピン酸イソノニル40部、青色色素5部、香料5部を加えて溶解する。該溶液を3.4cm×2.1cm、厚さ0.22cmの電気マット用基材(コットンリンターとパルプの混合物のフィブリルを板状に固めたもの)に均一に含浸させて電気蚊取りマットを得る。

## 【0204】

## 製剤例20

本発明化合物(1)～(82)の各々0.1部を脱臭灯油99.9部に溶解して、塩化ビニル製容器に入れ、上部をヒーターで加熱できるようにした吸液芯(無機粉体をバインダーで固め、焼結したもの)を挿入することにより液体電気蚊取りを得る。

## 【0205】

## 製剤例21

製剤例10で作製した本発明化合物(1)～(82)各々の製剤を、図5に示す電動ファンにセットしてファン式蚊取り製剤を得る。

## 【0206】

## 製剤例22

本発明化合物(1)～(82)の各々0.2部、ネオチオゾール(中央化成株式会社)49.8部をエアゾール缶に入れ、エアゾールバルブを装着した後、25部のジメチルエーテル及び25部のLPGを充填し、振とうを加え、トータルリリースエアゾール用アクチュエータを装着することにより製剤を得る。

## 【0207】

## 製剤例23

本発明化合物(1)～(82)の各々0.2部にジエチレングリコールモノエチルエーテル99.8部を加え、よく攪拌混合することにより動物経皮投与用のスポットオン剤を得る。

## 【0208】

## 製剤例 24

2, 4, 6-トリイソプロピル-1, 3, 5-トリオキサン4000mgを加圧成形(4t)して得た円盤状の固形物(直径3cm、厚さ3mm)に、本発明化合物(1)～(82)の各々3.3部とアセトン96.7部とからなる溶液1mLを均一に塗布してから乾燥することにより、錠剤を得る。

## 【0209】

## 製剤例 25

本発明化合物(1)～(82)の各々200mg及び2, 4, 6-トリイソプロピル-1, 3, 5-トリオキサン4000mgとの均一混合物を加圧成形(4t)して円盤状の(直径3cm、厚さ3mm)とすることにより、錠剤を得る。

## 【0210】

## 製剤例 26

本発明化合物(1)～(82)の各々200mgと2, 4, 6-トリイソプロピル-1, 3, 5-トリオキサン4000mgを50mLスクリュー管に入れ、振とうしながらヒートガンにて加熱し、溶融させてから放冷することにより、本発明化合物(1)～(82)を各々を保持する2, 4, 6-トリイソプロピル-1, 3, 5-トリオキサンを得る。

## 【0211】

次に、本発明化合物が有害生物防除剤の有効成分として有効であることを試験例により示す。なお、本発明化合物は前記の化合物番号で表す。

## 【0212】

## 試験例 1

製剤例5により得られた本発明化合物(1)、(2)、(3)、(4)、(5)、(22)、(23)、(24)、(28)、(29)、(30)、(31)、(32)、(33)、(36)、(37)、(38)、(39)、(46)、(48)、(49)、(51)、(53)、(54)、(58)、(60)、(61)、(64)、(66)、(67)、(68)、(69)、(70)、(71)、(72)、(73)、(74)及び(75)の製剤を有効成分濃度が500ppmとなるように希釈し、試験用薬液を調製した。

一方、ポリエチレンカップに培土ボンソル2号(住友化学工業(株)製)50gを入れて種子を10～15粒播種し、第2本葉が展開するまで生育させた後、高さを5cmに切り揃えたイネに対し、上記のように調製した試験用薬液を20ml/カップの割合で散布した。イネに散布処理された薬液が乾燥した後、供試虫逃亡防止のためのプラスチックカップに入れ、トビイロウンカの初齢幼虫を30頭放して蓋をし、その後温室内<25℃>に静置した。トビイロウンカの幼虫を放してから6日後に当該イネに寄生するトビイロウンカの数を調査した。

その結果、本発明化合物(1)、(2)、(3)、(4)、(5)、(22)、(23)、(24)、(28)、(29)、(30)、(31)、(32)、(35)、(36)、(37)、(38)、(39)、(46)、(48)、(49)、(51)、(53)、(54)、(58)、(60)、(61)、(64)、(66)、(67)、(68)、(69)、(70)、(71)、(72)、(73)、(74)及び(75)の処理において、寄生する虫数は3頭以下であった。

あった。

## 【0213】

## 試験例 2

製剤例5により得られた本発明化合物(1)、(2)、(3)、(4)、(5)、(9)、(10)、(11)、(17)、(20)、(21)、(22)、(23)、(24)、(25)、(27)、(29)、(30)、(31)、(32)、(35)、(36)、(37)、(38)、(39)、(46)、(47)、(48)、(49)、(50)、(51)、(52)、(53)、(54)、(55)、(58)、(60)、(61)

)、(62)、(64)、(66)、(67)、(68)、(69)、(70)、(71)、(73)、(74)及び(75)の製剤を有効成分濃度が500 ppmとなるように水で希釈し、試験用薬液を調製した。

直径5.5cmのポリエチレンカップの底に同大の濾紙を敷き、上記試験用薬液0.7mlを濾紙上に滴下し、餌としてショ糖30mgを均一に入れた。該ポリエチレンカップ内にイエバエ (*Musca domestica*) 雌成虫10頭を放ち、蓋をした。24時間後にイエバエの生死を調査し死虫率を求めた。

その結果、本発明化合物(1)、(2)、(3)、(4)、(5)、(9)、(10)、(11)、(17)、(20)、(21)、(22)、(23)、(24)、(25)、(27)、(29)、(30)、(31)、(32)、(35)、(36)、(37)、(38)、(39)、(46)、(47)、(48)、(49)、(50)、(51)、(52)、(53)、(54)、(55)、(58)、(60)、(61)、(64)、(66)、(67)、(68)、(69)、(70)、(71)、(73)、(74)及び(75)の処理においては死虫率90%以上を示した。

#### 【0214】

##### 試験例3

製剤例5により得られた本発明化合物(3)、(4)、(5)、(9)、(10)、(17)、(20)、(21)、(22)、(23)、(24)、(25)、(27)、(29)、(30)、(31)、(32)、(35)、(36)、(37)、(38)、(46)、(47)、(48)、(50)、(52)、(53)、(54)、(55)、(58)、(60)、(61)、(64)、(66)、(67)、(68)、(69)、(71)、(72)、(73)、(74)及び(75)の製剤を有効成分濃度が500 ppmとなるように水で希釈し、試験用薬液を調製した。

直径5.5cmのポリエチレンカップの底に同大の濾紙を敷き、上記試験用薬液0.7mlを濾紙上に滴下し、餌としてショ糖30mgを均一に入れた。該ポリエチレンカップ内にチャバネゴキブリ (*Blaatalla germanica*) 雄成虫2頭を放ち、蓋をした。6日後にチャバネゴキブリの生死を調査し死虫率を求めた。

その結果、本発明化合物(3)、(4)、(5)、(9)、(10)、(17)、(20)、(21)、(22)、(23)、(24)、(25)、(27)、(29)、(30)、(31)、(32)、(35)、(36)、(37)、(38)、(46)、(47)、(48)、(50)、(52)、(53)、(54)、(55)、(58)、(60)、(61)、(64)、(66)、(67)、(68)、(69)、(71)、(72)、(73)、(74)及び(75)の処理においては死虫率100%を示した。

#### 【0215】

##### 試験例4

製剤例5により得られた本発明化合物(1)、(3)、(8)、(9)、(10)、(11)、(12)、(20)、(21)、(22)、(23)、(28)、(29)、(30)、(31)、(32)、(35)、(36)、(37)、(38)、(39)、(43)、(46)、(47)、(48)、(49)、(51)、(53)、(54)、(55)、(58)、(60)、(61)、(62)、(63)、(65)、(66)、(67)、(68)、(69)、(70)、(71)、(72)、(73)、(74)及び(75)の製剤を有効成分濃度が500 ppmとなるように水で希釈し、試験用薬液を調製した。

上記試験用薬液0.7mlをイオン交換水100mlに加えた(有効成分濃度3.5ppm)。該液中にアカイエカ (*Culex pipiens pallens*) 終令幼虫20頭を放ち、1日後にその生死を調査し死虫率を求めた。

その結果、本発明化合物(1)、(3)、(8)、(9)、(10)、(11)、(12)、(20)、(21)、(22)、(23)、(28)、(29)、(30)、(31)、(32)、(35)、(36)、(37)、(38)、(39)、(43)、(46)、(47)、(48)、(49)、(51)、(53)、(54)、(55)、(58)

)、(60)、(61)、(62)、(63)、(65)、(66)、(67)、(68)、(69)、(70)、(71)、(72)、(73)、(74)及び(75)の処理においては死虫率90%以上を示した。

### 【0216】

#### 試験例5

本発明化合物(20)、(23)、(24)、(30)、(31)、(35)及び(37)の0.057%(w/v)アセトン溶液を調製し、該溶液0.2mlを直径3.8cmの濾紙上に均一に滴下し風乾した(本発明化合物として100mg/m<sup>2</sup>処理に相当)。ネコノミ(*Ctenocephalised felis*)成虫約20頭を200mlガラス瓶内に放った後、該濾紙をガラス瓶の蓋内部に該濾紙を填め込んだ蓋にて密封した。24時間後にネコノミの生死を調査し、死虫率を求めた。

その結果、本発明化合物(20)、(23)、(24)、(30)、(31)、(35)及び(37)の処理においては死虫率80%以上を示した。

### 【0217】

#### 試験例6

製剤例23により得られた本発明化合物(23)、(24)、(30)及び(31)の0.2%(w/v)ジエチレングリコールモノエチルエーテル溶液0.1mlをマウス雌(生体重約30g)の背線皮膚上に経皮投与した。該マウスを袋状の金網の中に挟み固定した後、底部に濾紙を敷いた900mlガラス瓶内に入れた。ネコノミ(*Ctenocephalised felis*)成虫20頭を該ガラス瓶内に放ち、該ガラス瓶の上部をナイロンネットにて蓋をした。24時間後にネコノミの生死を調査し、死虫率を求めた。

その結果、本発明化合物(23)、(24)、(30)及び(31)の処理においては死虫率95%以上を示した。

### 【0218】

#### 試験例7

本発明化合物(31)の0.25%(w/v)メタノール溶液を調製し、該溶液0.2mlを縦5.7cm、横16.4cmのパウチフィルム(コクヨ製)の表面(周囲5mm幅を除く部分)に均一に滴下し風乾した(本発明化合物として75mg/m<sup>2</sup>処理に相当)。該フィルムを2つ折りし、周囲5mm幅の部分をヒートシールして袋状とした。該袋内にフタトゲチマダニ(*Hemaphysalis longicornis*)の若ダニ10頭を入れ、開放部をクリップにて閉じ密封した。48時間後にフタトゲチマダニの生死を調査し、死虫率を求めた。

その結果、本発明化合物(31)の処理においては死虫率100%を示した。

### 【0219】

#### 試験例8

本発明化合物(31)の2%(w/v)アセトン溶液を調整し、該溶液2.5mlを10cm×12.5cmの濾紙に均一に滴下し風乾した。該濾紙を幅70cm×奥行き70cm×高さ70cmのガラスチャンバーの天井中央から吊るした後、オオキモンノミバエ(*Megaselia spiraculaaris*)成虫約20頭を放った。2時間経過後に全供試虫を回収し、5%砂糖水を与え、25℃で保管した。24時間後にオオキモンノミバエの生死を調査し死虫率を求めた。

その結果、本発明化合物(31)の処理においては死虫率100%を示した。

### 【0220】

#### 試験例9

本発明化合物(31)の2%(w/v)アセトン溶液を調整し、該溶液2.5mlを10cm×12.5cmの濾紙に均一に滴下し風乾した。該濾紙を幅70cm×奥行き70cm×高さ70cmのガラスチャンバーの天井中央から吊るした後、オオチョウバエ(*Clogmia albipunctata*)成虫約20頭を放った。2時間経過後に全供試虫を回収し、5%砂糖水を与え、25℃で保管した。24時間後にオオチョウバエの生死を調査し死虫率を求めた。

その結果、本発明化合物（31）の処理においては死虫率83%を示した。

### 【0221】

#### 試験例10

本発明化合物（31）の1%（w/v）アセトン溶液を調整し、該溶液5mlを10cm×25cmの濾紙に均一に滴下し風乾した。該濾紙を幅1.8m×奥行き1.8m×高さ1.8mのピートグラディチャンバーの天井中央から吊るした後、アカイエカ（*Culicoides pipiens pallidens*）雌成虫約50頭を放った。1時間経過後に全供試虫を回収し、5%砂糖水を与え、25℃で保管した。24時間後にアカイエカの生死を調査し死虫率を求めた。

その結果、本発明化合物（31）の処理においては死虫率86%を示した。

### 【0222】

#### 試験例11

本発明化合物（31）の1%（w/v）アセトン溶液を調整し、該溶液5mlを10cm×25cmの濾紙に均一に滴下し風乾した。該濾紙を幅1.8m×奥行き1.8m×高さ1.8mのピートグラディチャンバーの天井中央から吊るした後、イエバエ（*Musca domestica*）成虫約50頭を放った。1時間経過後に全供試虫を回収し、5%砂糖水を与え、25℃で保管した。24時間後にイエバエの生死を調査し死虫率を求めた。

その結果、本発明化合物（31）の処理においては死虫率92%を示した。

### 【0223】

#### 試験例12

本発明化合物（31）を0.05%、（w/v）Sudan red 7B アセトン溶液にて希釈し、0.005%（w/v）の溶液を調製した。該溶液0.2μlをイエシロアリ（*Coptotermes formosanus*）の職蟻の胸部背面に滴下処理した。処理1日後に生死を観察し、死虫率を算出した。

その結果、本発明化合物（31）の処理において、死虫率100%を示した。

### 【0224】

#### 試験例13

アイソパーM（イソパラフィン、エクソン化学登録商標名）90重量部、ジクロロメタン10重量部を混合した混合溶液30mlに、本発明化合物（31）7.5mgを溶解し0.025%（w/v）の油剤を調製した。チャバネゴキブリ（*Blattella germanica*）成虫10頭（雄雌各5頭）を入れたプラスチック容器（直径9.5cm、高さ4cm、底部16メッシュ金網）を、CSMAチャンバー（幅46cm、奥行き46cm、高さ70cm：Standard of Chemical Specialties Manufacturers Association）の底部に置いた。前記油剤1.5mlをCSMAチャンバー上部より供試ゴキブリに直撃噴霧した。噴霧30秒後、ゴキブリの入った容器を取り出し、全ゴキブリを別の清潔なプラスチック容器（200ml）内に移し、餌と水を与えた。薬剤処理後3日後に観察し、死虫率を求めた。

その結果、本発明化合物（31）の処理において、死虫率100%を示した。

### 【0225】

#### 試験例14

本発明化合物（4）、（20）、（22）、（23）、（24）、（29）、（30）、（31）、（35）、（36）、（37）、（38）及び（46）の1%（w/v）のアセトン溶液を調製した。該アセトン溶液1μlをチャバネゴキブリ雌成虫（*Blattella germanica*）の胸部腹面側に滴下処理した後、直径約9cm高さ約4.5cmのプラスチックカップへ移し、餌と水を与えた。25℃で保管し、7日後に生死を観察し死虫率を求めた。チャバネゴキブリは1カップあたり10頭とし、3反復試験を行った。

その結果、本発明化合物（4）、（20）、（22）、（23）、（24）、（29）、（30）、（31）、（35）、（36）、（37）、（38）及び（46）の処理において死虫率100%を示した。

### 【0226】

## 試験例 15

本発明化合物（23）、（24）及び（31）の2.5%（w/v）のアセトン溶液を調製し、該溶液0.1m lを2cm×2cmの濾紙（アドバンテック社製）に滴下含浸させ風乾した。該濾紙を幅10cm×高さ2cm×奥行き7cmの紙製の箱の内部底面中央に両面テープで貼り付けて、箱の蓋を完全に閉じた。該箱の10cm×2cmの1面に幅5mm高さ2cmの穴を1カ所開け、25cm×20cm×高さ8cmのプラスチック製バット内に設置し、チャバネゴキブリ（Blattella germanica）雌雄各10頭を放った。プラスチックバットの内部壁面部にはゴキブリ逃亡防止のためタルクを塗った。餌、水を与え25℃で保管し、7日後にチャバネゴキブリを観察し死虫率を求めた。試験は2反復行った。

その結果、本発明化合物（23）の処理区では97.5%、（24）及び（31）の処理区では100%の死虫率を示した。

## 【0227】

## 試験例 16

本発明化合物（23）、（24）及び（31）の5%（w/v）のアセトン溶液を調製し、該溶液0.1m lを2cm×2cmの濾紙（アドバンテック社製）に滴下含浸させ風乾した。該濾紙を幅10cm×高さ2cm×奥行き7cmの紙製の箱の内部底面中央に両面テープで貼り付けて、箱の蓋を完全に閉じた。該箱の10cm×2cmの1面に幅2mm高さ2cmの穴を1カ所開け、25cm×20cm×高さ8cmのプラスチック製バット内に設置し、クロゴキブリ（Periplaneta fuliginosa）雌雄各3頭を放った。プラスチックバットの内部壁面部にはゴキブリ逃亡防止のためタルクを塗った。餌、水を与え25℃で保管し、7日後にクロゴキブリを観察し死虫率を求めた。試験は2反復行った。

その結果、本発明化合物（23）の処理区では91.7%、（24）及び（31）の処理区では100%の死虫率を示した。

## 【0228】

## 試験例 17

本発明化合物（31）の5%（w/v）のアセトン溶液を調製し、該溶液0.1m lを2cm×2cmの濾紙（アドバンテック社製）に滴下含浸させ風乾した。該濾紙を幅10cm×高さ2cm×奥行き7cmの紙製の箱の内部底面中央に両面テープで貼り付けて、箱の蓋を完全に閉じた。該箱の10cm×2cmの1面に幅2mm高さ2cmの穴を1カ所開け、25cm×20cm×高さ8cmのプラスチック製バット内に設置し、ワモンゴキブリ（Periplaneta americana）雌雄各3頭を放った。プラスチックバットの内部壁面部にはゴキブリ逃亡防止のためタルクを塗った。餌、水を与え25℃で保管し、7日後にワモンゴキブリを観察し死虫率を求めた。試験は2反復行った。

その結果、本発明化合物（31）の処理区では100%の死虫率を示した。

## 【0229】

## 試験例 18

製剤例16に基づいて本発明化合物（31）の燻煙剤を得た。幅1.8m×奥行き1.8m×高さ1.8mのピートグラディチャンバーの2隅に各々チャバネゴキブリ（Blattella germanica）成虫10頭（雄5頭雌5頭）の入ったプラスチックカップ（直径12.5cm、高さ8cm）を置いた。水の入ったプラスチック容器に燻煙剤を入れ、ピートグラディチャンバー床面中央に置き、発熱揮散させた。2時間経過後にチャバネゴキブリを新しいプラスチックカップ（200ml）に回収し、餌、水を与え、25℃で保管した。72時間後にチャバネゴキブリの生死を調査し死虫率を求めた。

その結果、本発明化合物（31）の処理区では100%の死虫率を示した。

## 【0230】

## 試験例 19

アイソパーM（イソパラフィン、エクソン化学登録商標名）90重量部、ジクロロメタン10重量部を混合した混合溶液30mlに、本発明化合物（31）18.8mgを溶解し0.0625%（w/v）の油剤を調製した。クロヤマアリ（Formica fusca japonica）成虫10頭を入れたプラスチックカップ（200ml）を、CSMAチャンバー（幅46cm

m、奥行き46cm、高さ70cm:Standard of Chemical Specialties Manufacturers Association)の底部に置いた。前記油剤0.4mlをCSMAチャンバー上部より供試クロヤマアリに直撃噴霧した。噴霧10秒後、クロヤマアリの入った容器を取り出し、クロヤマアリを別の清潔なプラスチック容器(200ml)内に移し、餌と水を与えた。薬剤処理後72時間後に観察し、死虫率を求めた。

その結果、本発明化合物(31)の処理において、死虫率100%を示した。

#### 【0231】

##### 試験例20

市販の粉末黒砂糖1gに本発明化合物(31)の0.1重量%アセトン溶液を1ml滴下し、十分に混合した後に風乾してアリ用食毒剤を得た。クロヤマアリ(*Formica fusca japonica*)成虫10頭を入れたプラスチックカップ(860ml)に水を含ませた綿球、アルミ皿にアリ用食毒剤0.5gをのせたものを入れた。48時間後にクロヤマアリの生死を観察し、死虫率を求めた。

その結果、本発明化合物(31)を含有するアリ用食毒剤は、100%の致死効果を示した。

#### 【0232】

##### 試験例21

本発明化合物(31)の0.5重量%アセトン溶液3mlを動物用粉末飼料3gに滴下し、十分に混合したあと風乾し、殺虫食毒剤を得る。本食毒剤1gをアルミ皿にのせ、チャバネゴキブリ(*Blattella germanica*)成虫20頭(雄10頭雌10頭)を入れたプラスチックカップ(860ml)内に置く。水を与えて25℃で保管し、7日経過した時点でチャバネゴキブリの生死を観察し、食毒活性を調査する。本発明化合物(31)を含有する食毒剤はチャバネゴキブリに対し、十分な殺虫効果を示す。

#### 【0233】

##### 試験例22

本発明化合物(31)の10%(w/v)アセトン溶液を調整し、該溶液10mlを10cm×25cmの濾紙に均一に滴下し風乾する。該濾紙を幅70cm×奥行き70cm×高さ70cmのガラスチャンバーの天井中央から吊るし、チャバネゴキブリ(*Blattella germanica*)成虫20頭(雄10頭雌10頭)を放ったあと扉を閉める。ガラスチャンバー内には餌と水も設置して、72時間経過後にチャバネゴキブリの生死を調査する。本発明化合物(31)は濾紙からの蒸散効果により十分な殺虫効果を示す。

#### 【0234】

##### 試験例23

本発明化合物(31)の5%(w/v)のアセトン溶液を調製し、該溶液0.1mlを2cm×2cmの濾紙(アドバンテック社製)に滴下含浸させ風乾する。直径12.5cm、高さ8cmのプラスチックカップにクロヤマアリ(*Formica fusca japonica*)成虫10頭を放ち、餌と水を入れて蓋をする。蓋の内面に上記薬液処理濾紙を貼り付ける。また、カップ内部の側壁にはアリが登ってこないようにタルクを塗布する。25℃で保管し、7日後にクロヤマアリを観察し死虫率を求める。本発明化合物(31)は濾紙からの蒸散効果により十分な死虫率を示す。

#### 【0235】

##### 試験例24

アイソパーM(イソパラフィン、エクソン化学登録商標名)90重量部、ジクロロメタン10重量部を混合した混合溶液30mlに、本発明化合物(31)1.5gを溶解し5%(w/v)の油剤を調製する。クサギカメムシ(*Halyomorpha mista*)成虫10頭の入ったプラスチックカップ(860ml)をナイロンメッシュ(メッシュ幅2mm)で上部を蓋し、CSMAチャンバー(幅46cm、奥行き46cm、高さ70cm:Standard of Chemical Specialties Manufacturers Association)の底部に置く。前記油剤0.4mlをCSMAチャンバー上部より供試クサギカメムシに直撃噴霧する。噴霧10秒後、クサギカメムシの入ったカップを取り出し、カップ内に餌と水を置く。薬剤処理後72時間後に観察する

と、本発明化合物（31）の処理において、十分な殺虫効果を示す。

【0236】

試験例25

製剤例19で作製した本発明化合物（31）の製剤を電気蚊取りマット用ヒーターにセットし、幅70cm×奥行き70cm×高さ70cmのガラスチャンバーの床中央に置き、該ヒーターの加熱開始後、アカイエカ（*Culex pipiens pallens*）雌成虫約20頭を放つ。20分経過後に全供試虫を回収し、5%砂糖水を与え、25℃で保管し、24時間後にアカイエカの生死を調査する。本発明化合物（31）の処理において、十分な殺虫効果を示す。

【0237】

試験例26

製剤例20で作製した本発明化合物（31）の製剤を液体蚊取り用ヒーターにセットし、幅70cm×奥行き70cm×高さ70cmのガラスチャンバーの床中央に置き、該ヒーターの加熱開始後、アカイエカ（*Culex pipiens pallens*）雌成虫約20頭を放つ。20分経過後に全供試虫を回収し、5%砂糖水を与え、25℃で保管し、24時間後にアカイエカの生死を調査する。本発明化合物（31）の処理において、十分な殺虫効果を示す。

【図面の簡単な説明】

【0238】

【図1】製剤例9の固体担体の上面図である。

【0239】

【図2】製剤例9の固体担体の斜視図である。

【0240】

【図3】製剤例13の折り畳み可能な構造を有する紙を示す説明図である。(a)のように折り畳まれてなる紙は、面状部材の一辺を軸として擺動することにより、例えば(b)のように筒状材が180°ひろがり、使用時の一形態となる。

【0241】

【図4】製剤例14の折り畳み可能な構造を有する紙を示す説明図である。(a)のように折り畳まれてなる紙は、相対する面状部材を互いに引き離すことにより、(b)のように筒状材をひろげることができる。

【0242】

【図5】製剤例21に用いられる下方に電動ファンが設置してある高さ7cm、直径8.3cmのプラスチック円筒の斜視図である。

【0243】

【図6】試験例26に用いられる液体蚊取り用ヒーターの説明図である。

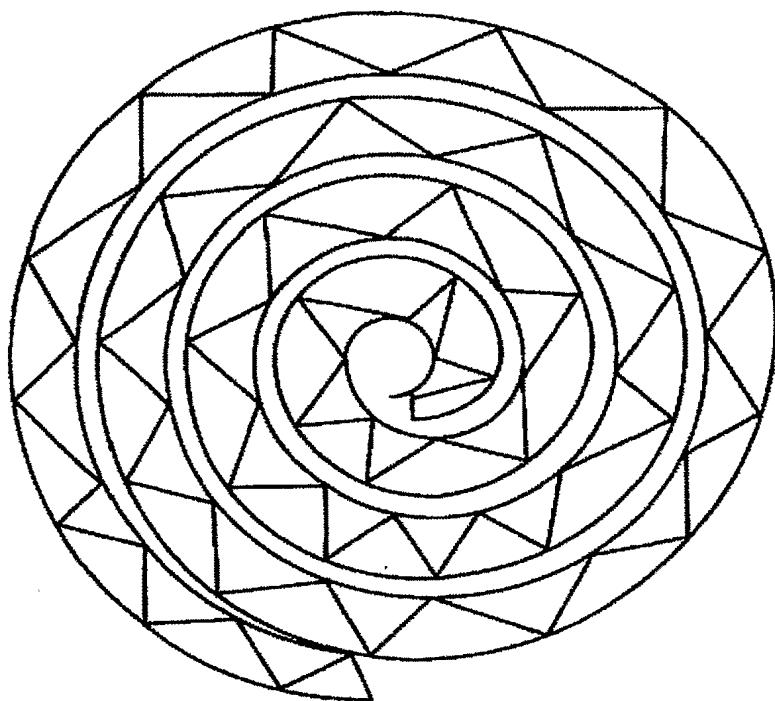
【符号の説明】

【0244】

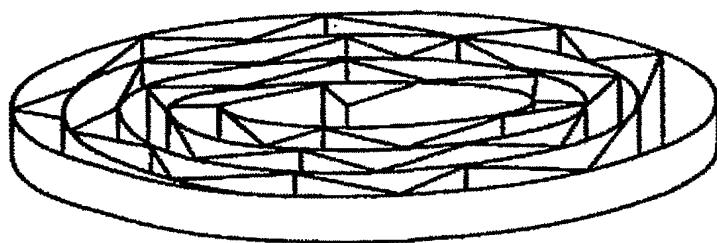
(図5)

- 1 . . . モーター
- 2 . . . ファン
- 3 . . . 空気の流れ方向  
(図6)
- 4 . . . 加熱蒸散用殺虫液
- 5 . . . 発熱体
- 6 . . . 吸液芯
- 7 . . . 薬液を入れた容器

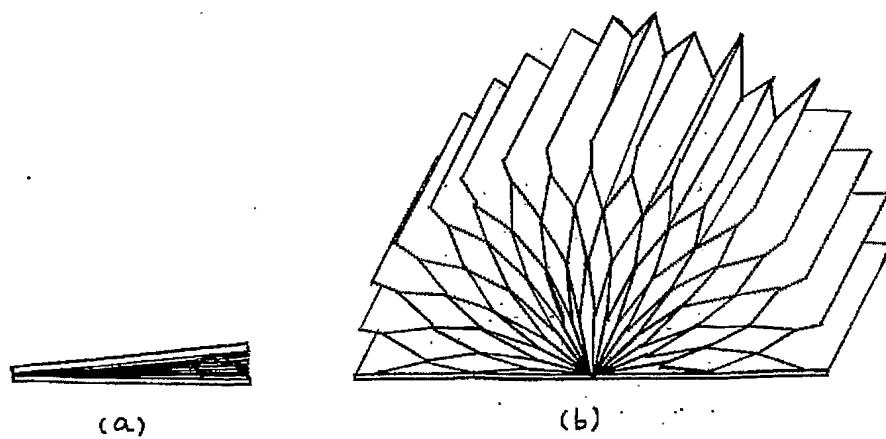
【書類名】図面  
【図 1】



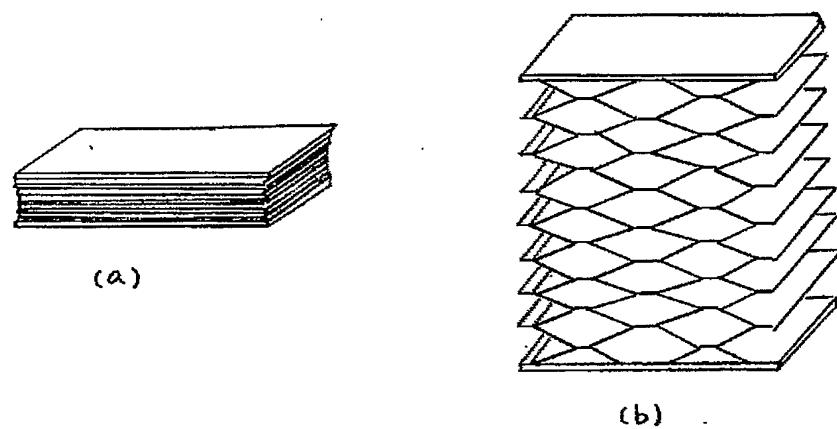
【図 2】



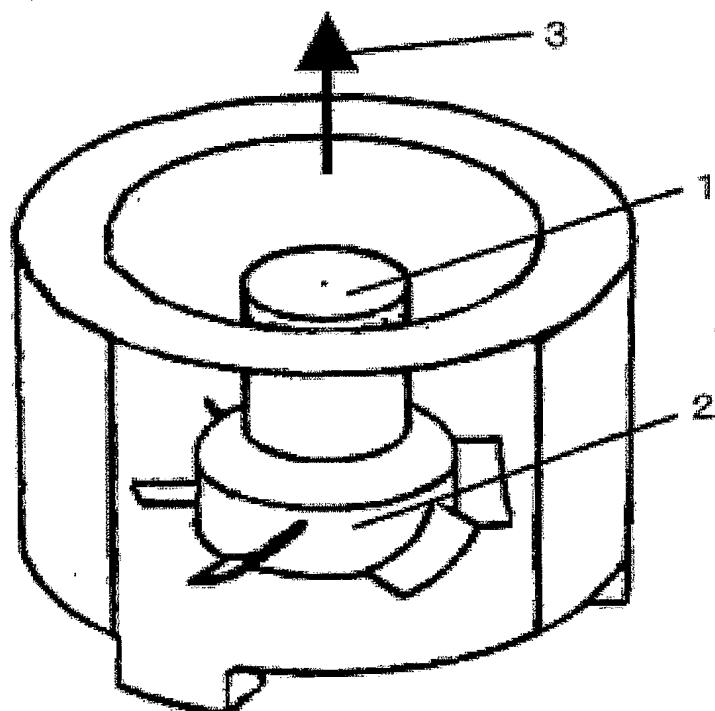
【図 3】



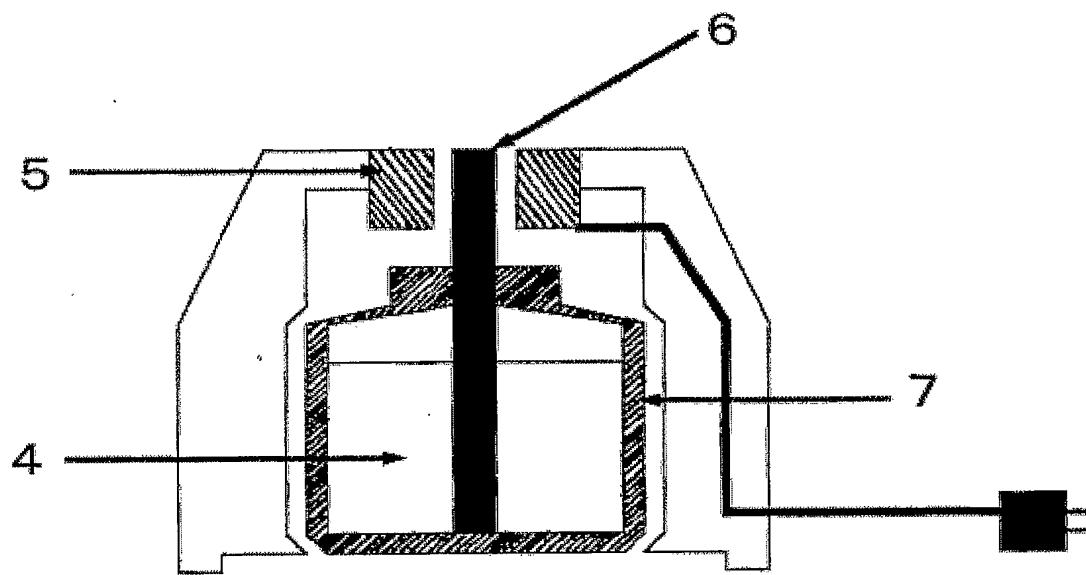
【図4】



【図5】



【図6】



【書類名】要約書

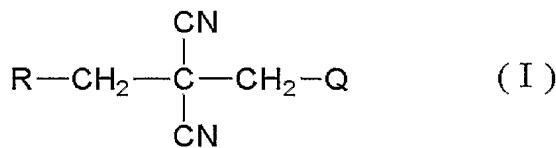
【要約】

【課題】

有害生物に対して、優れた防除効力を有する化合物及び該化合物による有害生物の防除方法を提供すること。

【解決手段】

式 (I)



[式中、RはC1-C4フルオロアルキル基を表し、Qはハロゲン原子、ハロゲン原子で置換されていてもよいC1-C6アルキル基、ハロゲン原子で置換されていてもよいC2-C6アルケニル基、ハロゲン原子で置換されていてもよいC2-C6アルキニル基、ハロゲン原子で置換されていてもよいC3-C7シクロアルキル基又はハロゲン原子で置換されていてもよい(C3-C7シクロアルキル)C1-C4アルキル基を表す。]で示されるニトリル化合物は有害生物に対して優れた防除効力を有する。

【選択図】 なし

## 認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2004-283540
受付番号	50401654518
書類名	特許願
担当官	第六担当上席 0095
作成日	平成 16 年 10 月 4 日

## &lt;認定情報・付加情報&gt;

## 【特許出願人】

【識別番号】 000002093

【住所又は居所】 大阪府大阪市中央区北浜4丁目5番33号

【氏名又は名称】 住友化学工業株式会社

## 【代理人】

【識別番号】 100093285

【住所又は居所】 大阪府大阪市中央区北浜4-5-33 住友化学  
知的財産センター株式会社内

【氏名又は名称】 久保山 隆

## 【選任した代理人】

【識別番号】 100113000

【住所又は居所】 大阪府大阪市中央区北浜4-5-33 住友化学  
知的財産センター株式会社内

【氏名又は名称】 中山 亨

## 【選任した代理人】

【識別番号】 100119471

【住所又は居所】 大阪府大阪市中央区北浜四丁目5番33号 住友  
化学知的財産センター株式会社

【氏名又は名称】 榎本 雅之

特願 2004-283540

## 出願人履歴情報

識別番号

[000002093]

1. 変更年月日 1990年 8月28日  
[変更理由] 新規登録  
住 所 大阪府大阪市中央区北浜4丁目5番33号  
氏 名 住友化学工業株式会社
2. 変更年月日 2004年10月 1日  
[変更理由] 名称変更  
住 所 变更  
東京都中央区新川二丁目27番1号  
氏 名 住友化学株式会社